

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**





US 2003/060573

①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 101 36 382 A 1**

⑤① Int. Cl. 7:  
**C 08 G 73/22**  
C 09 J 179/06  
H 01 L 21/312  
H 01 B 3/42

②① Aktenzeichen: 101 36 382.6  
②② Anmeldetag: 26. 7. 2001  
④③ Offenlegungstag: 20. 2. 2003

DE 101 36 382 A 1

⑦① Anmelder:  
Infineon Technologies AG, 81669 München, DE

⑦③ Vertreter:  
PAe Reinhard, Skuhra, Weise & Partner GbR, 80801  
München

⑦② Erfinder:  
Walter, Andreas, 91349 Egloffstein, DE; Sezi, Recai,  
91341 Röttenbach, DE

⑤⑤ Entgegenhaltungen:  
DE 44 32 965 C1

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.**

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Phenylverknüpfte Oxazolcyanurate als Dielektrikum mit guten Klebe- und Fülleigenschaften

⑤⑦ Die folgende Erfindung betrifft phenylverknüpfte Polybenzoaxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroarylgebundenen Cyanat-Gruppen, die zum Kleben und als Dielektrikum, insbesondere für elektronische Bauteile, verwendbar sind, sowie ein Verfahren zu deren Herstellung.

DE 101 36 382 A 1

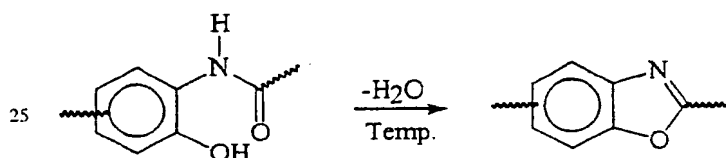
**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen, die zum Kleben und als Dielektrikum, insbesondere für elektronische Bauteile, verwendbar sind, sowie ein Verfahren zu deren Herstellung.

#### Hintergrund der Erfindung und Stand der Technik

**[0002]** In der Mikroelektronik werden hochwärmebeständige Polymere als Schutz- und Isolierschichten benötigt. So können diese Polymere als Dielektrikum zwischen zwei Metallbahnen und/oder Metallebenen eingesetzt werden, z. B. bei Multi-Chip-Modulen, Speicher- und Logikchips oder als Pufferschicht (Buffer Code) zwischen dem Chip und seinem Gehäuse.

**[0003]** Einige dieser Polymere, wie z. B. Vorstufen aromatischer Polyimide (PI) oder Polybenzoxazole (PBO), zeigen eine gute Löslichkeit in organischen Lösungsmitteln sowie gute Filmbildungseigenschaften und können mittels kostengünstiger Steuertechnik auf die elektronischen Bauteile aufgebracht werden. Solche Vorstufen werden nach einer Temperaturbehandlung zum PI oder PBO umgewandelt bzw. cyclisiert (siehe hierzu nachfolgendes Schema für PBO) und erhalten somit ihre endgültigen Eigenschaften. Man kann diese Polymere aber auch in bereits cyclisierter Form herstellen, wobei die Löslichkeit dieser bereits cyclisierten Polymere jedoch verringert wird.

Schema



**[0004]** Bei der Cyclisierung wird Wasser freigesetzt. Normalerweise bereitet dies bei der Anwendung keine Probleme. Für besondere Anwendungen kann dies aber problematisch sein, wenn das Wasser sehr schwer oder gar nicht wegdiffundieren kann. Die Folge ist Blasen- oder Rissbildung.

**[0005]** In der Chiptechnologie müssen beispielsweise sehr enge Gräben zwischen den metallischen Leiterbahnen mit einem Isolator, dem Dielektrikum, ausgefüllt werden. Die Aspektverhältnisse (Verhältnis Strukturhöhe zu Strukturbreite) können dabei weit über 4 liegen, wobei die Breite der Gräben beispielsweise nur 100 nm beträgt. In solchen Fällen werden Materialien benötigt, die neben einer guten Isolierwirkung auch sehr gute Haft- und Fülleigenschaften zeigen. Dabei ist die Haftung sowohl an den Seitenwänden als auch auf dem Untergrund wichtig. Es darf kein Wasser freigesetzt werden, beispielsweise durch eine Cyclisierung, da das Wasser in diesen Fällen kaum eine Möglichkeit zum Wegdiffundieren hat und Blasen erzeugt. Eine chemische Reaktion, die die Löslichkeit des Materials herabsetzt und für den Erhalt der endgültigen Eigenschaften sorgt (Vernetzung oder Cyclisierung), darf dann keine Abspaltung von irgendwelchen Bestandteilen beinhalten.

**[0006]** Für die Anwendung in der Mikroelektronik müssen die Materialien außerdem Prozeßtemperaturen bis zu 450°C oder höher problemlos überstehen und gegenüber Prozeßchemikalien, wie Lösungsmittel, Stripper (Lösungsmittel bzw. Substanzen zur Entfernung von Photolacken), Basen, Säuren oder aggressive Gase stabil sein.

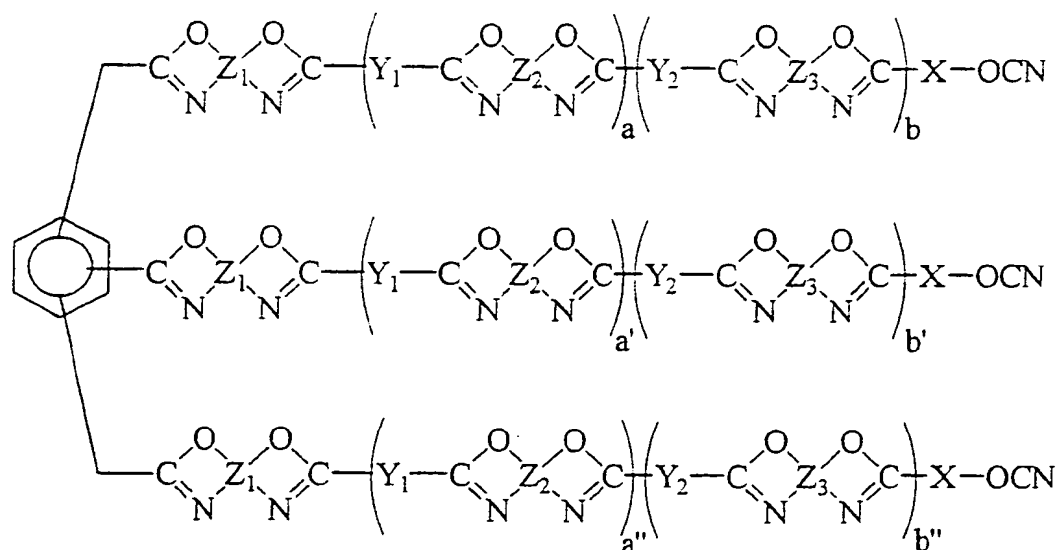
**[0007]** Ein Ziel der vorliegenden Erfindung ist es, neue isolierende Polymere (Dielektrika) bereitzustellen, die neben einer guten elektrischen Isolierwirkung und ausreichender Temperaturstabilität auch sehr gute Klebe- und Fülleigenschaften zeigen und beim Vernetzen keine Bestandteile abspalten.

**[0008]** Diese Probleme wurden gemäß dem Stand der Technik, beispielsweise durch Benzocyclobutene (Fa. Dow Chemical Lit.: H. W. Boone, D. W. Smith, D. A. Babb, Polymer Preprints Vol. 39, Nr. 2, S. 812f.) versucht zu lösen, welche auch in der Mikroelektronik Anwendung fanden. Diese Materialien zeigen jedoch eine nicht ausreichende Haftung und sind nicht ausreichend temperaturstabil.

**[0009]** Die vorliegende Erfindung stellt daher gemäß Anspruch 1 phenylverknüpfte Polybenzoxazole bereit, die endständige, Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Cyanurat-Gruppen aufweisen.

**[0010]** Insbesondere werden erfindungsgemäße Polybenzoxazole der nachfolgenden allgemeinen Formel (I) bereitgestellt:

Formel (I)



wobei für a, a', a'', b, b' und b'' unabhängig voneinander gilt:

a, a', a'' = 0-100;

b, b', b'' = 0-100;

X die folgende Bedeutung aufweist: substituiertes oder unsubstituiertes Aryl, eine substituierte oder unsubstituierte mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffverbindung, ein substituiertes oder unsubstituiertes kondensiertes Ringsystem oder ein substituiertes oder unsubstituiertes heterocyclischer Rest;

Y<sub>1</sub> und Y<sub>2</sub> die folgende Bedeutung aufweisen, wobei Y<sub>1</sub> gleich oder ungleich Y<sub>2</sub> sein kann:

substituiertes oder unsubstituiertes Aryl, eine substituierte oder unsubstituierte mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffverbindung, ein substituiertes oder unsubstituiertes kondensiertes Ringsystem, jeweils substituiertes oder unsubstituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Aralkyl, Aralkenyl, Aralkinyl, Heterocyclo oder Cycloalkenyl;

und Z<sub>1</sub> bis Z<sub>3</sub> jeweils unabhängig voneinander die nachfolgende Bedeutung aufweisen:

jeweils substituiertes oder unsubstituiertes Aryl, Aralkyl, Aralkenyl, Aralkinyl, Heteroaryl, eine substituierte oder unsubstituierte mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffverbindung oder ein substituiertes oder unsubstituiertes kondensiertes Ringsystem.

[0011] Die vorliegende Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Herstellung von Polybenzoxazolen der allgemeinen Formel (I) mit den Schritten:

a. Umsetzen eines Bisaminophenols der Formel

H<sub>2</sub>N-(HO)Z<sub>1</sub>(OH)-NH<sub>2</sub> und/oder H<sub>2</sub>N-(HO)Z<sub>2</sub>(OH)-NH<sub>2</sub> und/oder

H<sub>2</sub>N-(HO)Z<sub>3</sub>(OH)-NH<sub>2</sub> mit Benzol-1,3,5-tricarbonsäure,

anschließend wahlweise mit einer Verbindung zur Einführung der Gruppe Y<sub>1</sub> und/oder Y<sub>2</sub>, und anschließend mit einer Verbindung zur Einführung der Gruppe X-OH, um ein phenylverknüpftes Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Hydroxygruppen zu erhalten;

b. Umsetzen der unter Schritt a. erhaltenen phenylverknüpften Polybenzoxazole, die endständige, Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Hydroxygruppen aufweisen, mit Bromcyan, um phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen zu erhalten;

wobei Z<sub>1</sub>, Z<sub>2</sub>, Z<sub>3</sub>, X, Y<sub>1</sub> und Y<sub>2</sub> wie oben definiert sind.

[0012] Die vorliegende Erfindung betrifft weiterhin die Verwendung von Polybenzoxazolen der allgemeinen Formel (I) als Dielektrika in elektronischen Bauteilen und zum Kleben.

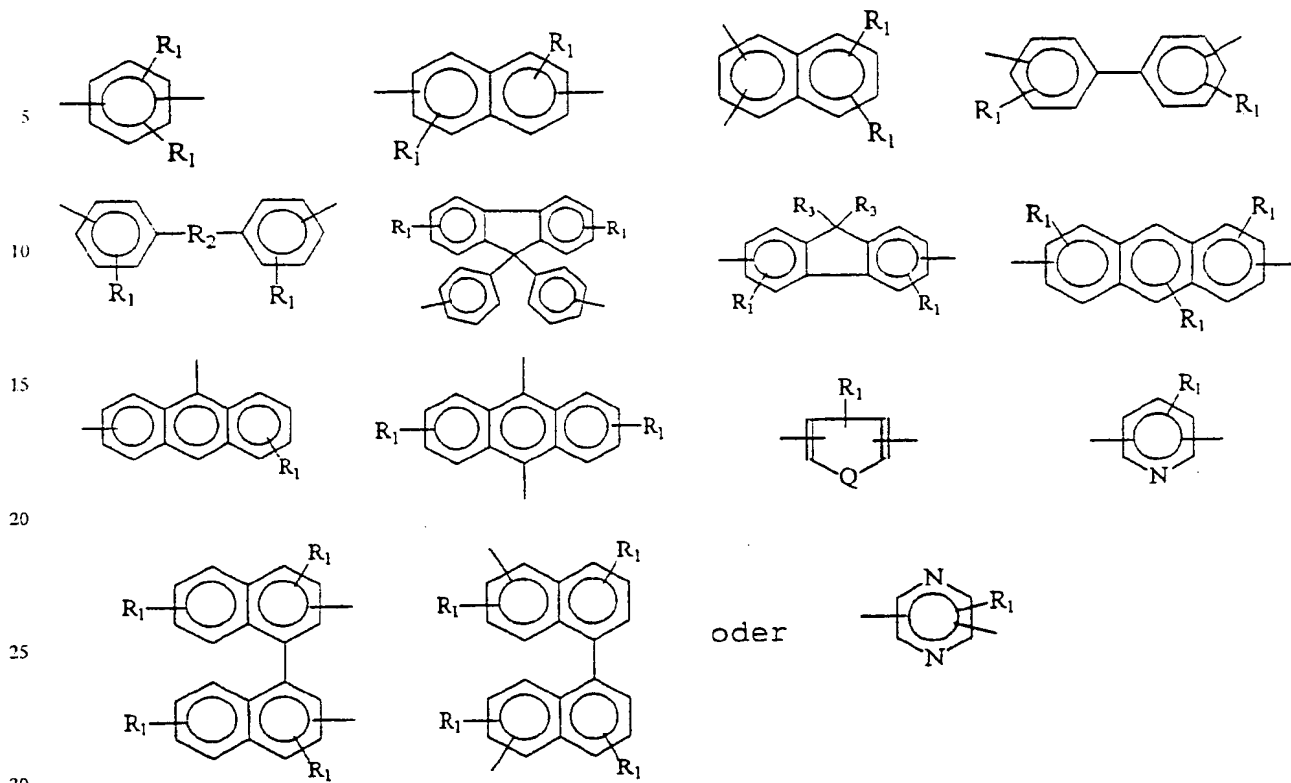
#### Ausführliche Beschreibung

[0013] Die vorliegende Erfindung betrifft phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen, insbesondere von Polybenzoxazolyanuraten der oben angegebenen Formel (I).

[0014] Es ist bevorzugt, daß a, a' und/oder a'' in der Formel (I) unabhängig voneinander 0-20, weiterhin bevorzugt 1-20, und/oder b, b' und/oder b'' unabhängig voneinander 0-20, bevorzugt 1-20, sind.

[0015] Weiterhin sind besonders bevorzugt:

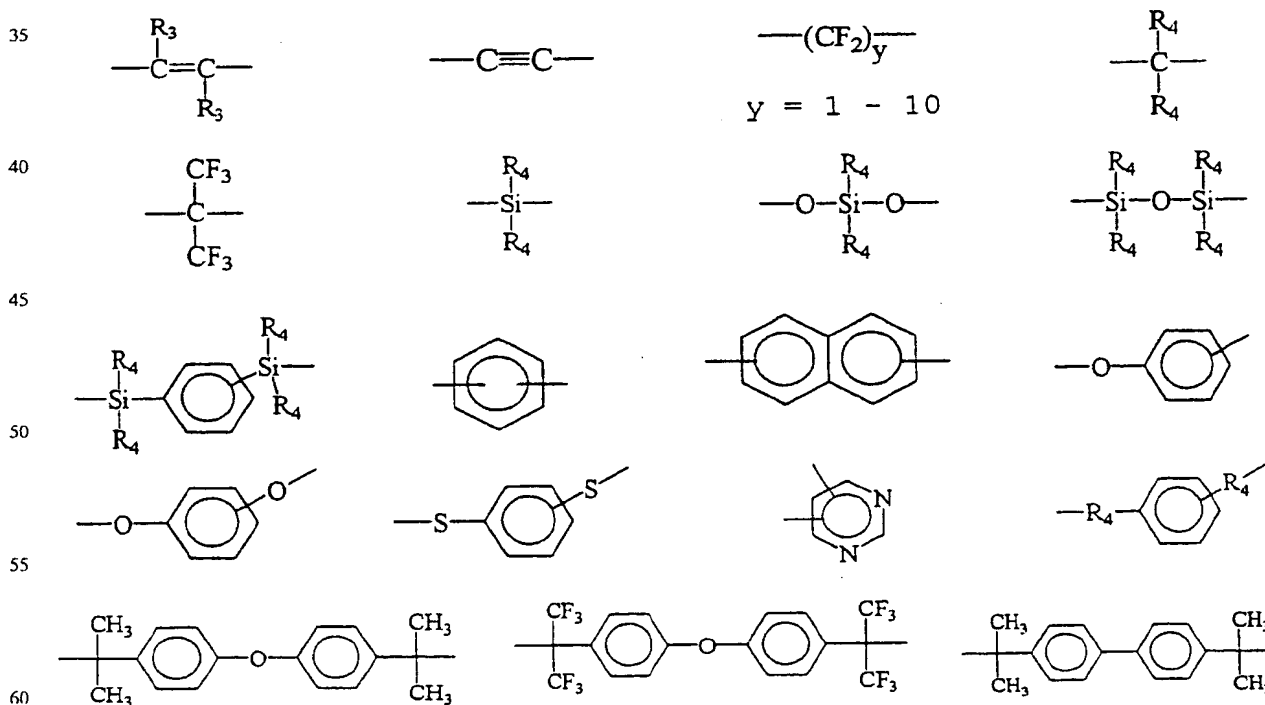
Verbindungen, bei denen X die folgende Bedeutung aufweist:



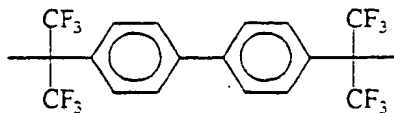
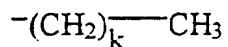
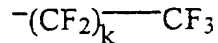
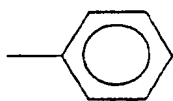
wobei für Q gilt: -O-, -S- oder -NH-;

für R<sub>1</sub> gilt: -H-, -CF<sub>3</sub>-, -OCN-, Alkyl oder Aryl;

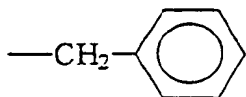
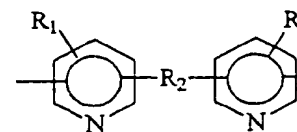
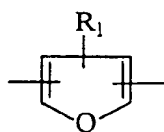
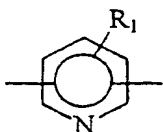
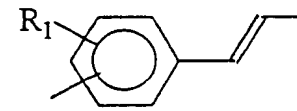
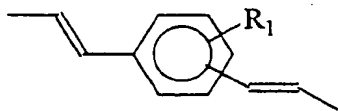
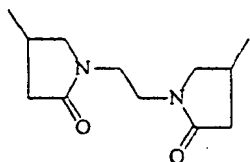
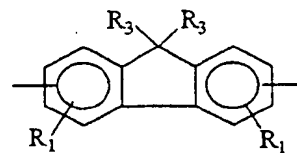
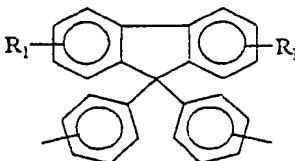
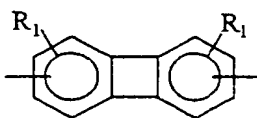
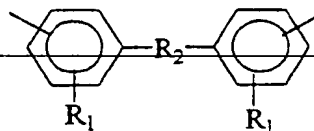
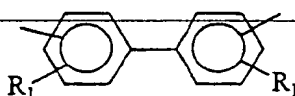
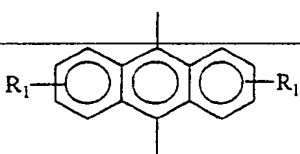
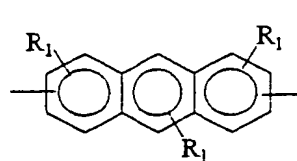
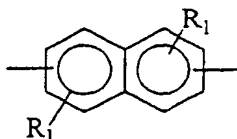
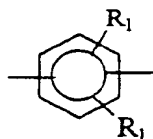
für R<sub>2</sub> gilt: -O-, -CO-, NR<sub>3</sub>-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, -SO<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>-, ausserdem:

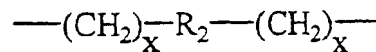
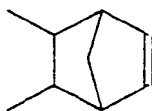
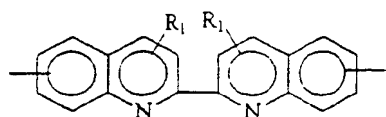
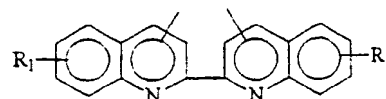
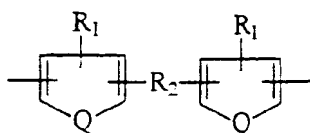
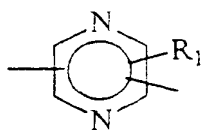


oder

für  $R_3$  gilt:  $-H$ , ausserdem: $(k = 0 - 10)$  $(k = 0 - 10)$ 

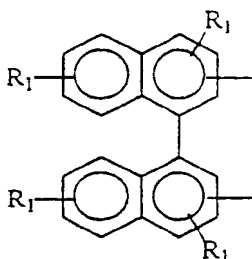
oder

und für  $R_1$  gilt: Alkyl mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Aryl.[0016] Weiterhin sind erfindungsgemäß Polybenzoxazole der Formel (I) mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanuratgruppen bevorzugt, bei denen für  $Y_1$  und  $Y_2$  gilt, wobei  $Y_1$  gleich oder ungleich  $Y_2$  sein kann:

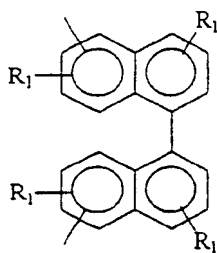


(x = 1 - 10); wenn

R<sub>2</sub> = -CH<sub>2</sub>-, dann x = 0 - 10

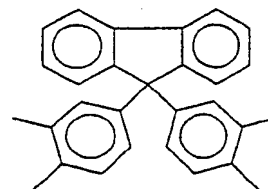
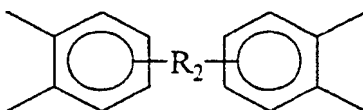
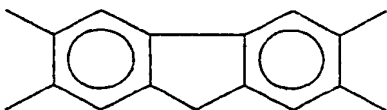
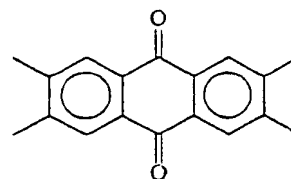
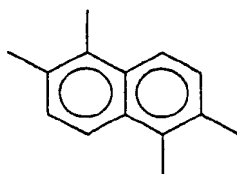
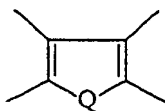
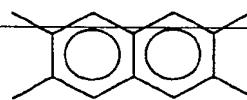
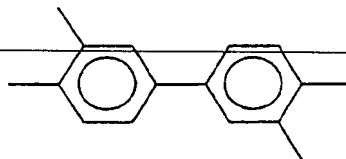
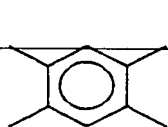


oder

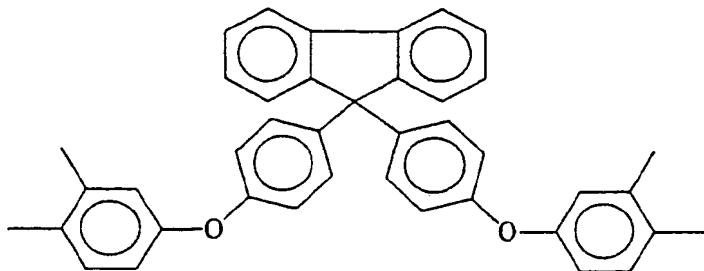


wobei R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub> und Q wie oben definiert sind.

**[0017]** Weiterhin sind erfindungsgemäß Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen der Formel (I) bevorzugt, bei denen für Z<sub>1</sub>, Z<sub>2</sub> und Z<sub>3</sub> gilt, wobei Z<sub>1</sub> bis Z<sub>3</sub> gleich oder ungleich voneinander sein können:



oder

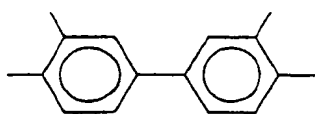
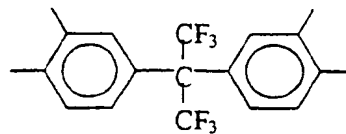
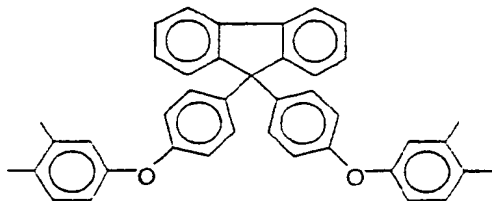


wobei Q und R<sub>2</sub> wie oben 5 definiert sind.

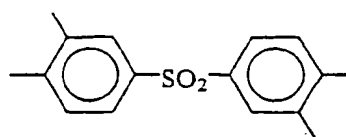
**[0018]** In der Bedeutung für Y<sub>1</sub> und Y<sub>2</sub> sind geeignete Beispiele für mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffreste



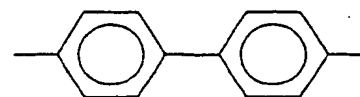
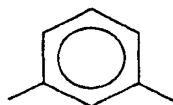
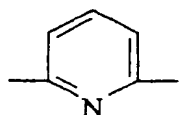
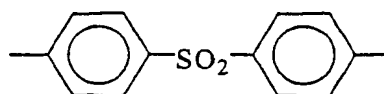
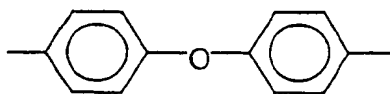
kondensierte Ringsysteme und heterocyclische Verbindungen: Biphenyl, Anthracen, Naphthalin, Fluoren, Pyren, Thiophen, Thiazol oder Benzthiazol, Imidazol oder Benzimidazol, Pyrrol, Furan, Pyridin oder Pyrazin oder Derivate hiervon.  
 [0019] Geeignete Beispiele für mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffreste, kondensierte Ringsysteme und heterocyclische Verbindungen für  $Z_1$  bis  $Z_3$  sind Biphenyl, Anthracen, Anthrachinon, Fluoren, Pyren, Thiophen, Thiazol oder Benzthiazol, Imidazol oder Benzimidazol, Pyrrol, Furan, Pyridin, Pyrazin oder Derivate hiervon.  
 [0020] Besonders bevorzugte Reste für  $Z_1$  und/oder  $Z_2$ , und/oder  $Z_3$  sind:



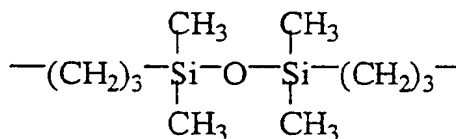
oder



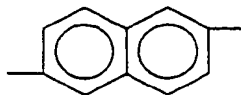
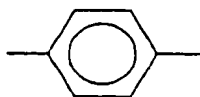
[0021] Besonders bevorzugte Reste für  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  sind:



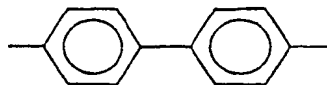
oder



[0022] Besonders bevorzugte Reste für X sind:



oder



[0023] Die Oxazolcyanurate der Formel (I) können erfindungsgemäß in zwei Schritten hergestellt werden:

- Umsetzen eines Bisaminophenols der Formel  $H_2N-(HO)Z_1(OH)-NH_2$  und/oder  $H_2N-(HO)Z_2(OH)-NH_2$  und/oder  $H_2N-(HO)Z_3(OH)-NH_2$  mit Benzol-1,3,5-tricarbonsäure, anschließend wahlweise mit einer Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$ , und anschließend mit einer Verbindung zur Einführung der Gruppe  $X-OH$ , um ein phenylverknüpftes Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Hydroxygruppen zu erhalten;
- Umsetzen der unter Schritt a. erhaltenen phenylverknüpften Polybenzoxazole, die endständige, Aryl- oder Hete-

roaryl-gebundene Hydroxygruppen aufweisen, mit Bromcyan, um phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen zu erhalten.

5

Zu Schritt a

[0024] Diese Umsetzung kann erfindungsgemäß auf verschiedene Weisen vorgenommen werden.

[0025] Erfindungsgemäß ist beispielsweise bevorzugt die Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  eine Dicarbonsäure der Formel  $\text{HOOC}-Y_1-\text{COOH}$  und/oder  $\text{HOOC}-Y_2-\text{COOH}$ , die Verbindung zur Einführung der Gruppe X ist eine Hydroxycarbonsäure der Formel  $\text{HO}-X-\text{COOH}$ , und die Umsetzung gemäß Schritt a. erfolgt in Gegenwart von Phosphorpentoxid. Dabei entsteht direkt ein cyclisiertes phenylverknüpftes Polybenzoxazol, das Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Hydroxyl-Endgruppen aufweist.

[0026] Die Hydroxylgruppe der Hydroxycarbonsäure ist bei dieser Reaktion vorzugsweise geschützt, um Nebenreaktionen zu vermeiden. Geeignete Schutzgruppen sind z. B. Alkyl-, bspw. tert-Butyl-, Alkylcarbonyl-, vorzugsweise Acetylgruppen, Benzoyl- oder Alkylbenzoylgruppen. Die Entfernung der Schutzgruppe, um Polybenzoxazole, die Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Hydroxyl-Endgruppen aufweisen, zu erhalten, erfolgt nach bekannten Verfahren. Bspw. kann eine Alkylcarbonylgruppe als Schutzgruppe, wie z. B. die Acetylgruppe, in Dimethylformamid und Ammoniak abgespalten werden. Im Falle einer Alkylgruppe als Schutzgruppe kann die Abspaltung durch eine starke Säure wie z. B. Bromwasserstoffsäure erfolgen.

[0027] Bevorzugte Lösungsmittel für den ersten Reaktionsschritt sind beispielsweise Methansulfonsäure, N-Methylpyrrolidon, Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid,  $\gamma$ -Butyrolacton, Polyphosphorsäure, eine Mischung aus Schwefel- und Phosphorsäure sowie Mischungen dieser Lösungsmittel. Das Lösungsmittel liegt bei dieser Verfahrensvariante in einem Gemisch mit Phosphorpentoxid vor, vorzugsweise mit 5–10 Gew.-% Phosphorpentoxid, weiterhin bevorzugt 7–8 Gew.-%, bezogen auf die Zusammensetzung aus Lösungsmittel und Phosphorpentoxid, vor.

[0028] Besonders bevorzugt ist ein Gemisch aus Methansulfonsäure und Phosphorpentoxid, vorzugsweise mit einem Gehalt von 5–10 Gew.-%, weiterhin bevorzugt 7–7,5 Gew.-%, Phosphorpentoxid.

[0029] Die Reaktionstemperaturen gemäß Schritt 1 liegen erfindungsgemäß vorzugsweise zwischen 50 und 150°C, wobei die Reaktionszeiten zwischen 1 Stunde und 20 Stunden betragen können, wobei 4 Stunden bis 12 Stunden bevorzugt sind.

[0030] Das entstandene Polymer kann durch Zutropfen der Reaktionslösung in ein Fällungsmittel gefällt, gewaschen und getrocknet werden. Geeignete Fällungsmittel sind Wasser, Alkohole, wie Isopropanol, Butanol oder Ethanol, sowie Mischungen dieser Fällmittel. Das Fällungsmittel kann bevorzugt auch bis zu 10% Ammoniak enthalten.

[0031] Eine weitere Möglichkeit zur Umsetzung gemäß dem ersten Reaktionsschritt ist die Reaktion eines Bis-o-aminophenol mit Benzol-1,3,5-tricarbonsäure und anschließend mit einer Dicarbonsäure und einer Hydroxycarbonsäure in Gegenwart einer carbonsäureaktivierenden Verbindung, wie beispielsweise Carbonyldiimidazol oder Dicyclohexylcarbodiimid oder Hydroxysuccinimid oder Hydroxybenzotriazol. Hierbei ist die Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  eine Dicarbonsäure der Formel  $\text{HOOC}-Y_1-\text{COOH}$  und/oder  $\text{HOOC}-Y_2-\text{COOH}$ , die Verbindung zur Einführung der Gruppe X ist eine Hydroxycarbonsäure der Formel  $\text{HO}-X-\text{COOH}$ , und die Umsetzung gemäß Schritt a. erfolgt in Gegenwart einer carbonsäureaktivierenden Gruppe.

[0032] Als Lösungsmittel sind wieder die oben genannten Lösungsmittel für Schritt a. einsetzbar, jedoch ohne die Gegenwart von Phosphorpentoxid.

[0033] Die Hydroxylgruppe der Hydroxycarbonsäure ist bei dieser Reaktion vorzugsweise geschützt, um Nebenreaktionen zu vermeiden. Geeignete Schutzgruppen sind z. B. Alkyl-, bspw. tert-Butyl-, Alkylcarbonyl-, vorzugsweise Acetylgruppen, Benzoyl- oder Alkylbenzoylgruppen. Die Entfernung der Schutzgruppe, um phenylverknüpfte Polybenzoxazole, die Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Hydroxyl-Endgruppen aufweisen, zu erhalten, erfolgt nach bekannten Verfahren.

[0034] Anschließend kann das Produkt in Lösung zum Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen, Hydroxygruppen cyclisiert werden. Dies erfolgt bevorzugt in Gegenwart einer katalytischen Menge an Säure durch Temperaturbehandlung bei einer Temperatur von vorzugsweise 150 bis 200°C.

[0035] Grundsätzlich eignen sich alle Reagenzien, die das bei der Reaktion entstandene Wasser an sich binden oder die Reaktivität der Carbonylgruppe erhöhen. Bevorzugt sind jedoch die genannten Verbindungen Carbonyldiimidazol oder Dicyclohexylcarbodiimid oder Hydroxysuccinimid oder Hydroxybenzotriazol. Das entstandene Polymer kann durch Zutropfen der Reaktionslösung in ein geeignetes Fällungsmittel ausgefällt und anschließend getrocknet werden. Geeignete Fällungsmittel sind Wasser, Alkohole, wie Isopropanol, Butanol oder Ethanol, sowie Mischungen dieser Fällmittel. Das Fällungsmittel kann bevorzugt auch bis zu 10% Ammoniak enthalten.

[0036] Eine weitere Möglichkeit zur Umsetzung gemäß dem ersten Reaktionsschritt ist die Reaktion eines Bis-o-aminophenol mit Benzol-1,3,5-tricarbonsäuretrichlorid und anschließend mit einem Dicarbonsäuredichlorid und einem Hydroxycarbonsäurechlorid in Gegenwart einer Base, wie beispielsweise Pyridin, Morpholin, Pyrrol oder Triethylamin.

[0037] Hierbei ist in Schritt a. die Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  ein Dicarbonsäurechlorid der Formel  $\text{ClOC}-Y_1-\text{COCl}$  und/oder  $\text{ClOC}-Y_2-\text{COCl}$  oder ein anderes reaktives Dicarbonsäurederivat. Reaktives Dicarbonsäurederivat bedeutet, dass die Carbonylgruppen eine im Vergleich zur Carbonsäure höhere Carbonylgruppenreaktivität aufweisen. Die Verbindung zur Einführung der Gruppe X ist ein Hydroxycarbonsäurechlorid der Formel  $\text{HO}-X-\text{COCl}$  oder ein anderes reaktives Hydroxycarbonsäurederivat. Schritt a. wird dabei in Gegenwart einer N-haltigen organischen Base durchgeführt.

[0038] Als Lösungsmittel sind wieder die oben genannten Lösungsmittel für Schritt a. einsetzbar, jedoch ohne die Gegenwart von Phosphorpentoxid.

[0039] Die Hydroxylgruppe der Hydroxycarbonsäure ist bei dieser Reaktion vorzugsweise geschützt, um Nebenreaktionen zu vermeiden. Geeignete Schutzgruppen sind z. B. Alkyl-, bspw. tert-Butyl-, Alkylcarbonyl-, vorzugsweise Ace-

tylgruppen, Benzoyl- oder Alkylbenzoylgruppen. Die Entfernung der Schutzgruppe, um phenylverknüpfte Polybenzoxazole, die Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Hydroxyl-Endgruppen aufweisen, zu erhalten, erfolgt nach bekannten Verfahren.

[0040] Anschließend kann das Produkt in Lösung zum Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen, Hydroxygruppen cyclisiert werden. Dies erfolgt bevorzugt in Gegenwart einer katalytischen Menge an Säure durch Temperaturbehandlung bei einer Temperatur von vorzugsweise 150 bis 200°C.

[0041] Das entstandene Polymer kann durch Zutropfen der Reaktionslösung in ein geeignetes Fällungsmittel ausgefällt und anschließend getrocknet werden. Geeignete Fällungsmittel sind Wasser, Alkohole, wie Isopropanol, Butanol oder Ethanol, sowie Mischungen dieser Fällmittel. Das Fällungsmittel kann bevorzugt auch bis zu 10% Ammoniak enthalten.

#### Zu Schritt b

[0042] Der zweite Schritt beim Verfahren zur Herstellung von Polybenzoxazolcyanuraten der allgemeinen Formel (I) besteht in der Umsetzung der unter Schritt 1 erhaltenen phenylverknüpften Polybenzoxazole, die endständige Hydroxygruppen aufweisen, mit Bromcyan, um phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen Cyanurat-Gruppen zu erhalten. Dabei kann das getrocknete Polybenzoxazol mit Hydroxyaryl oder Hydroxyheteroaryl-Endgruppen in einem geeigneten Lösungsmittel, vorzugsweise in Gegenwart einer Base, mit Bromcyan zur Reaktion gebracht werden. Nach Beendigung der Reaktion kann in einem Fällungsmittel ausgefällt, gewaschen und getrocknet werden. Als Fällungsmittel eignen sich bevorzugt aprotische Lösungsmittel, wie beispielsweise Kohlenwasserstoffe, halogenierte Kohlenwasserstoffe, Aromaten, die keine Amin-, Thiol- oder Hydroxygruppen aufweisen, Ether, Petroleum, Benzin, Cyclohexan oder Toluol und in der Kälte (ungefähr 0 bis 10°C) Wasser.

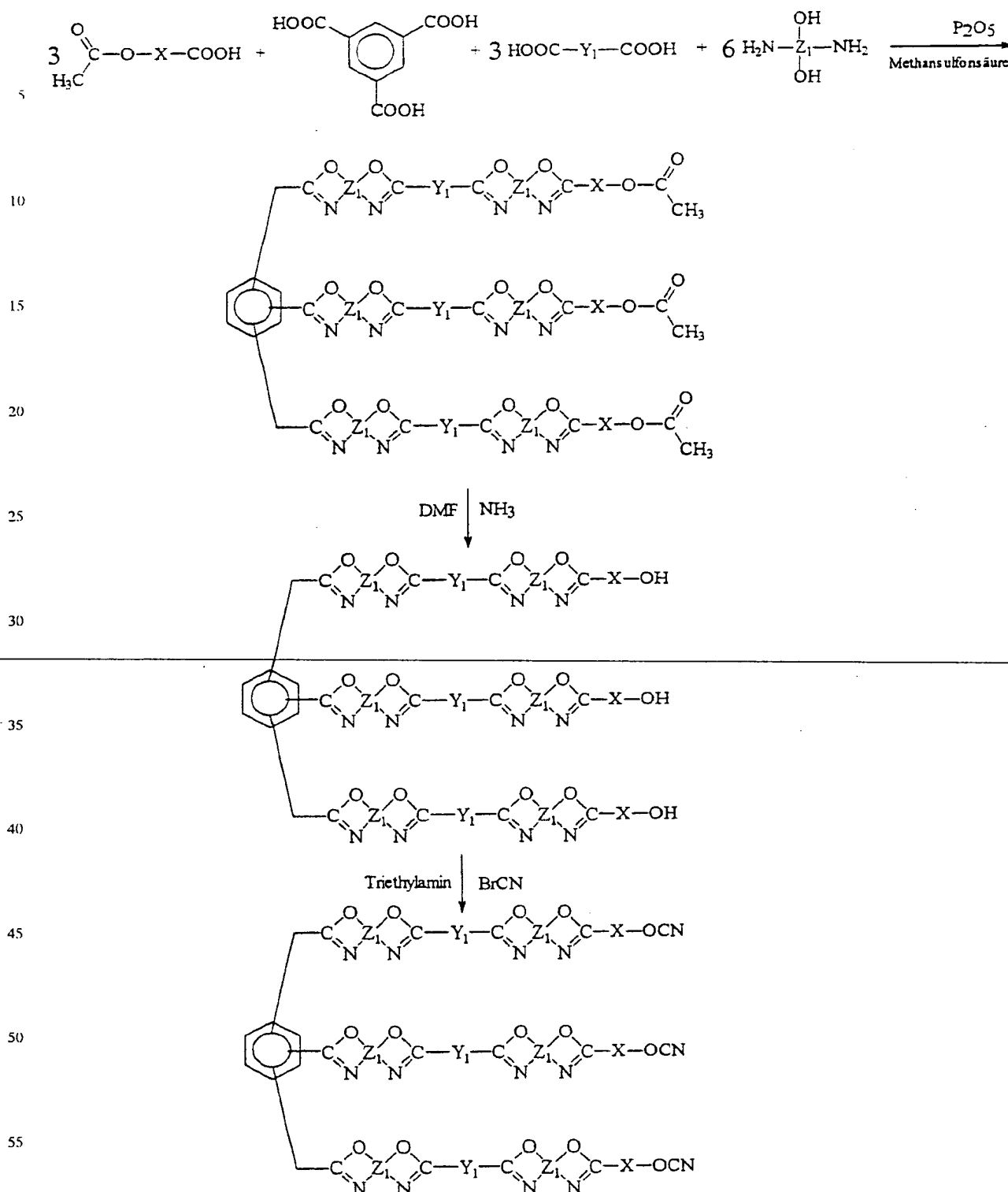
[0043] Besonders geeignete Basen sind Substanzen mit einem tertiären Stickstoff, wie Triethylamin, Dimethylbenzylamin oder Pyridin. Besonders geeignete Lösungsmittel für den zweiten Schritt der Polymersynthese sind  $\gamma$ -Butyrolacton, Aceton, Essigsäureethylester, halogenierte Kohlenwasserstoffe, Aromaten, die keine Amin-, Thiol- und Hydroxygruppen aufweisen, oder Gemische hiervon. Geeignete Reaktionstemperaturen sind -10°C bis 30°C, bevorzugt 0°C bis 20°C.

[0044] Anstatt der erwähnten Fällung kann das Lösungsmittel auch entfernt werden, wobei die Temperatur 60°C nicht übersteigen sollte.

[0045] Das ausgefallene Polymer ist bereits nach Filtration und Trocknung einsatzbereit.

[0046] Der zweite Reaktionsschritt kann auch durch eine Phasentransferkatalyse in Wasser und einem geeigneten Lösungsmittel, z. B. Ether, Essigsäureethylester, Toluol, Methylenchlorid oder Chloroform, mit Bromcyan und Triethylamin als Hilfsbase bei 0°C bis 20°C zum Polybenzoxazolcyanurat erfolgen.

[0047] Im folgenden ist noch ein bevorzugtes Reaktionsschema zur Herstellung der erfindungsgemäßen Verbindungen angegeben:

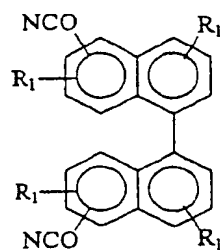
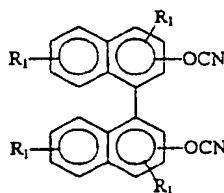
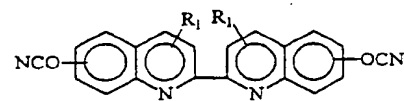
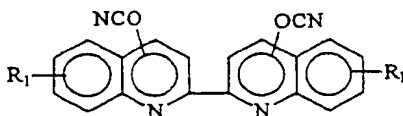
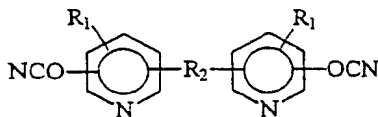
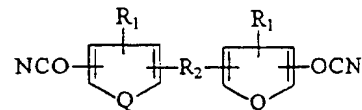
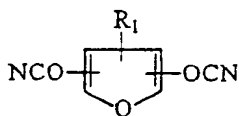
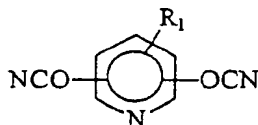
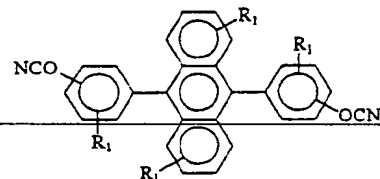
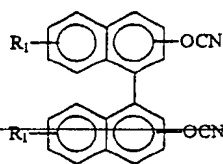
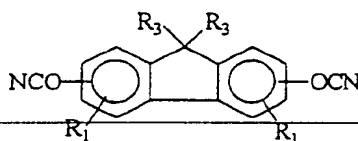
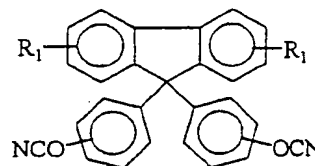
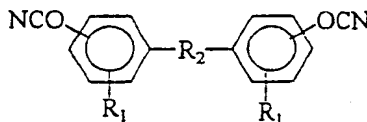
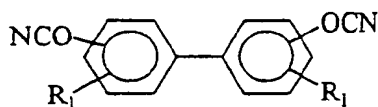
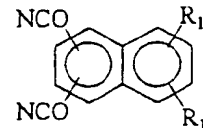
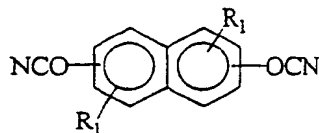
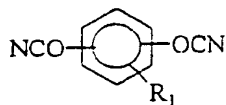


[0048] Hierbei erfolgt die Umsetzung gemäß dem ersten Reaktionsschritt bevorzugt in Methansulfonsäure mit 7% Phosphorpentoxid bei 80–140°C für ca. 4 bis 12 Stunden. Anstelle der Acetylgruppe kann die Hydroxycarbonsäure auch mit einer anderen Schutzgruppe versehen sein. Eine Alkylcarboxylgruppe als Schutzgruppe, wie z. B. die Acetylgruppe, wird anschließend in Dimethylformamid und Ammoniak abgespalten. Im Falle einer Alkylgruppe als Schutzgruppe erfolgt die Abspaltung durch eine starke Säure wie z. B. Bromwasserstoffsäure. Das Reaktionsprodukt, ein phenylverknüpftes Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Hydroxygruppen, wird anschließend in Gegenwart von Triethylamin mit BrCN in einem aprotischen Lösungsmittel zum Endprodukt, einem phenylverknüpften Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanuratgruppen umgesetzt.

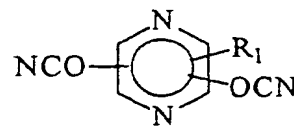
[0049] Die erfindungsgemäßen Polymere sind in vielen organischen Lösungsmitteln gut löslich, beispielsweise Aceton, Cyclohexanon, Diethylenglycolmonoethylether, Diethylenglycoldiethylether, N-Methylpyrrolidon, γ-Butyrolacton,

Ethyllactat, Tetrahydrofuran oder Essigsäureethylester. Die erfindungsgemäßen Polybenzoxazole liegen bevorzugt in einer Konzentration von 5–35 Gew.-%, weiterhin bevorzugt 15–30 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtzusammensetzung vor, das Lösungsmittel in einer Konzentration von 65–95 Gew.-%, weiterhin bevorzugt 70–85 Gew.-%. Die Viskosität der Polymerlösung kann durch Variation der gelösten Masse an Polybenzoxazolyanurat gesteuert werden.

[0050] Die Lösung aus erfindungsgemäßen Polybenzoxazolyanuraten und organischen Lösungsmitteln kann, bezogen auf die Gesamtzusammensetzung, bevorzugt 0,1–15 Gew.-%, weiterhin bevorzugt 0,5–10 Gew.-% eines Vernetzers enthalten. Durch Verwendung von Vernetzern kann das Aushärteverhalten, das Klebeverhalten, die Festigkeit sowie die thermische und chemische Stabilität der Polybenzoxazolyanurate positiv beeinflusst werden. Als Vernetzer können dabei bevorzugt kurzketige Verbindungen mit mindestens zwei Cyanurat-Gruppierungen verwendet werden. Beispiele sind in den nachfolgenden Formeln angegeben. Diese Vernetzer können der Polymerlösung bevorzugt mit 0,1 bis 15 Gew.-% in bezug auf die Gesamtzusammensetzung zugesetzt werden. Bevorzugt sind erfindungsgemäß die nachfolgenden Verbindungen als Vernetzer einsetzbar:

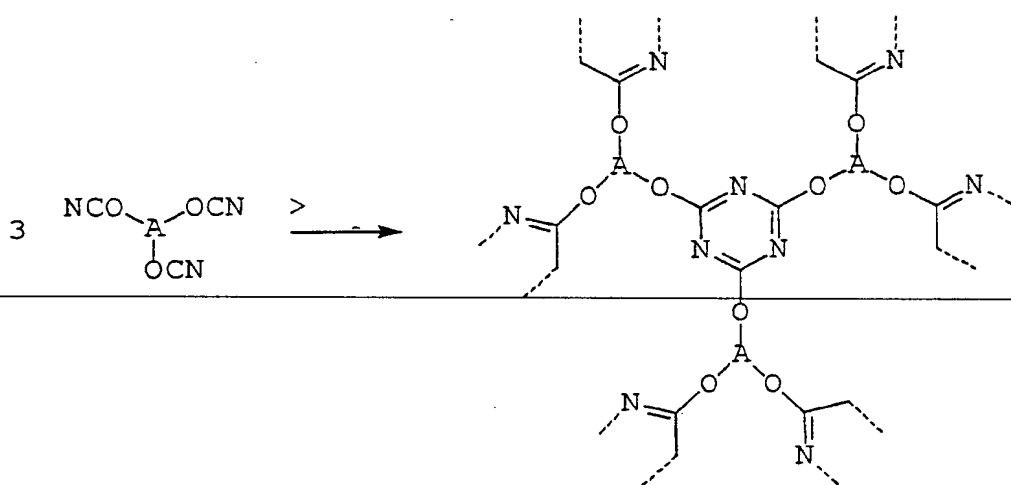
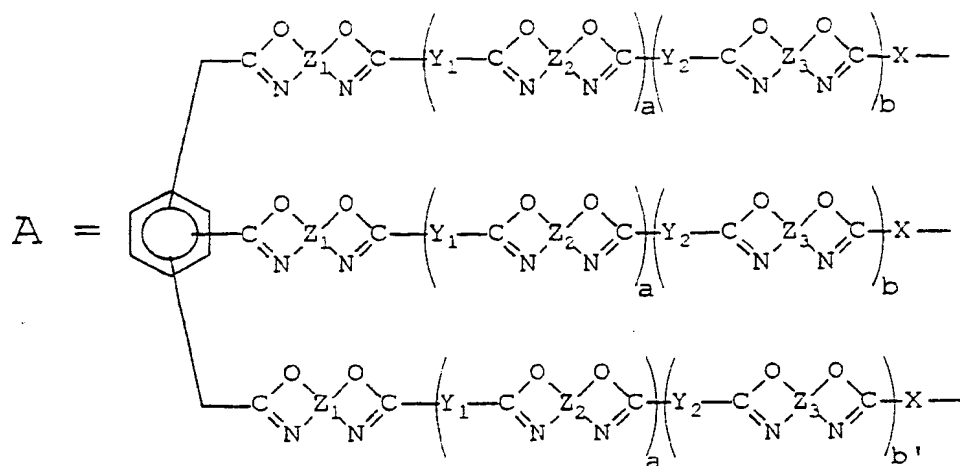


oder



wobei  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$  und  $Q$  wie oben definiert sind.

[0051] Die Vernetzungsreaktion läuft erfindungsgemäß bevorzugt nach folgendem Schema ab:



**[0052]** Die Vernetzung der Polybenzoxazolcyanurate erfolgt vorzugsweise unter Temperatureinwirkung, bevorzugt bei 200°C bis 400°C, kann jedoch auch mittels Laserbehandlung, Ultraschall- oder Mikrowellenbehandlung erfolgen.

**[0053]** Die Polybenzoxazolcyanurate der vorliegenden Erfindung können bevorzugt zum Kleben verwendet werden. Eine weiterhin bevorzugte Verwendung ist die Verwendung als Dielektrika in elektronischen Bauelementen, insbesondere als Dielektrika zum Füllen von Gräben, wobei die Gräben ein Aspektverhältnis (Verhältnis Strukturhöhe zu Strukturbreite) von über 4 aufweisen, wobei die Breite der Gräben nur 100 nm oder weniger beträgt. Bei der Verwendung als Kleber können die Polybenzoxazolcyanurate der vorliegenden Erfindung grundsätzlich nach folgendem allgemeinen Verfahren verwendet werden:

- Die Polybenzoxazolcyanurate der allgemeinen Formel (I) werden auf die Flächen oder die Flächen der zu verklebenden Materialien bzw. Bauteile aufgebracht;
- die zu verklebenden Flächen werden miteinander in Kontakt gebracht;
- eine Vernetzung der Polybenzoxazolcyanurate wird durchgeführt.

**[0054]** Die Vernetzung der Polybenzoxazolcyanurate erfolgt vorzugsweise unter Temperatureinwirkung, kann jedoch auch mittels Laserbehandlung, Ultraschall- oder Mikrowellenbehandlung erfolgen.

[0055] Bei der Verwendung als Dielektrika werden die Polybenzoxazolcyanurate der vorliegenden Erfindung auf das zu beschichtende Substrat aufgebracht, wonach eine Vernetzung der erfindungsgemäßen Polybenzoxazolcyanurate erfolgt. Die Vernetzung mittels Temperatur erfolgt vorzugsweise bei einer Temperatur von 200°C–400°C, bevorzugt 250–350°C.

[0056] Das Auftragen auf das jeweilige Substrat, sowohl beim Kleben, als auch bei der Funktion als Dielektrikum, erfolgt bevorzugt, indem die Polybenzoxazolycyanurate in Form eines Pulvers auf die Fläche(n) aufgebracht werden und das Pulver durch Erwärmen in eine Schmelze überführt wird, die auf der Oberfläche verteilt werden kann, bspw. durch Verstreichen oder Pinseln.

[0057] Gemäß einer weiteren bevorzugten Ausführungsform können die Polybenzoxazolcyanurate der vorliegenden Erfindung in einer Schmelze, oder in einem organischen Lösungsmittel gelöst, mittels Schleudertechnik, Sprühen oder Verstreichen bzw. Pinseln auf die zu verklebende Fläche bzw. die zu beschichtende Fläche aufgebracht werden. Bei lösungsmittelhaltigen Systemen ist eine Trocknung vorteilhaft, in vielen Fällen auch notwendig. Nach Vernetzung haben

die Polymere der vorliegenden Erfindung eine hohe Temperaturstabilität, was sich bei einer thermogravimetrischen Analyse bei  $> 450^{\circ}\text{C}$  zeigte.

[0058] Es ist ein besonderer Vorteil der vorliegenden Erfindung, daß bei der Vernetzung keine Spaltprodukte bilden bzw. freisetzen. Dadurch sind sie besonders gut zum Füllen von sehr engen Gräben geeignet, insbesondere mit einem Aspektverhältnis von  $> 4$  und Grabenbreiten von 100 nm und geringer.

[0059] Die erfindungsgemäßen Polymere sind gegenüber Prozeßchemikalien, wie Lösungsmitteln, Strippern, Basen, Säuren oder aggressiven Gasen stabil.

[0060] Ein besonderer Vorteil der Materialien ist weiterhin die sehr hohe Klebkraft auf verschiedenen Oberflächen, wie beispielsweise Aluminium, Titan, Vanadium, Chrom, Mangan, Eisen, Kobalt, Nickel, Kupfer, Zink, Stahl, Messing, Palladium, Silber, Zinn, Tantal, Wolfram, Platin, Gold, Blei, Kohlenstoff, einschließlich mittels Plasma abgeschiedene kohlenstoffhaltige Schichten, Kohlefasern, Silizium oder Germanium. Die erfindungsgemäßen Polybenzoxazolcyanurate können daher bevorzugt zur Verklebung, zum Füllen von engen Gräben bzw. Strukturen und/oder Beschichtung dieser Materialien verwendet werden.

[0061] Weiterhin bevorzugte Materialien zur Beschichtung, zum Füllen von Gräben bzw. Strukturen zum Verkleben sind Legierungen der oben genannten Materialien bzw. Verbindungen der oben genannten Materialien mit Sauerstoff und/oder Stickstoff, insbesondere Siliziumcarbid, Siliziumnitrid, Siliziumoxid, Titanitrid, Tantalnitrid, Siliziumoxynitrid, Wolframnitrin, Galliumarsenid, Galliumnitrid, Gallium-Indium-Phosphit, Indium-Zinn-Oxid. Grundsätzlich sind erfindungsgemäß weiterhin solche Verbindungen bevorzugt zur Verklebung vorgesehen, die in der Mikro- und Optoelektronik eingesetzt werden, insbesondere Chips und/oder Wafer.

[0062] Weiterhin erfindungsgemäß geeignete Materialien zur Verklebung oder Beschichtung sind Keramiken, Glasceramiken, Gläser, Tonwaren, Porzellan, Steingut und/oder Silikate. Als Gläser können bevorzugt Quarz-, Natron-, Kali-, Natron-Kali-Kalk-, Bor-Tonerde-, Borosilikat-, Kali-Blei-Gläser eingesetzt werden. Auch Emaille kann erfindungsgemäß verklebt werden. Weiterhin sind verschiedene Gesteine, wie Marmor, Basalt, Kalkstein, Granit und Beton erfindungsgemäß bevorzugt verklebbar bzw. beschichtbar.

[0063] Sämtliche der oben genannten Materialien können bei Verklebung mit sich selbst oder mit anderen der oben genannten Materialien verklebt werden.

[0064] Im folgenden wird die vorliegende Erfindung anhand von Ausführungsbeispielen erläutert, die den Umfang der Erfindung nicht beschränken sollen.





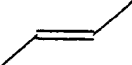

[0065] In der Beschreibung wird auf die folgenden Figuren Bezug genommen:

[0066] Fig. 1 zeigt eine typische rasterelektronenmikroskopische Aufnahme von mit Polybenzoxazolcyanuraten der vorliegenden Erfindung gefüllten Al-Strukturen.

[0067] Fig. 2a zeigt schematisch den Probenaufbau zur Messung der Dielektrizitätskonstante von Substraten, die mit erfindungsgemäßen Polybenzoxazolcyanuraten beschichtet wurden.

[0068] Fig. 2b zeigt die zur Abscheidung von Ti-Pads (Ti-Inseln bzw. Ti-Elektroden) verwendete Schattienmaske.

[0069] Im Rahmen der vorliegenden Erfindung gelten die folgenden Definitionen:

	bedeutet	$-\text{CH}_2-$	
	bedeutet	$\text{H}-\text{C}$	40
	bedeutet	$-\text{C}-$	45
	bedeutet	$\text{O}$ $\parallel$ $\text{C}$	50
	bedeutet	$-\text{CH}=\text{CH}-$	55
	bedeutet	$-\text{C}\equiv\text{CH}$	60

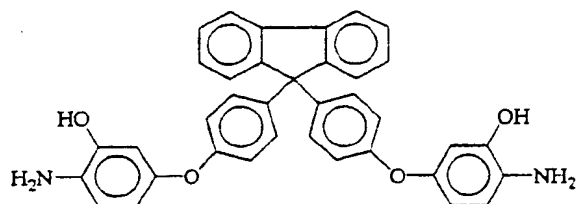
gilt für zyklische, verzweigte und lineare Verbindungen.

## Beispiele

## Verwendete Chemikalien

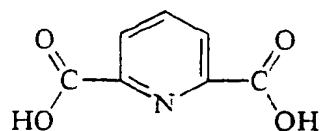
## Bisaminophenole

9,9'-Bis-(4-((3-hydroxy-4-amino)phenoxy)phenyl)fluoren – (Bisaminophenol 1)



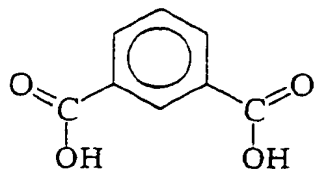


Pyridin-2,6-dicarbonsäure – (Dicarbonsäure 3)



5

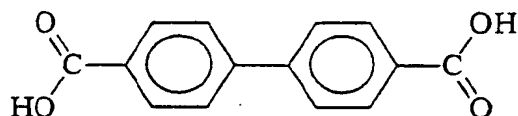
Isophthalsäure – (Dicarbonsäure 4)



10

15

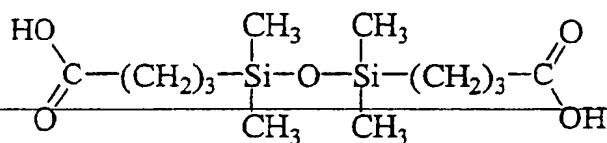
Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure – (Dicarbonsäure 5)



20

25

1,3-Bis(3-carboxypropyl)-tetramethyldisiloxan – (Dicarbonsäure 6)

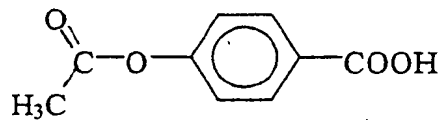


30

Endcap

35

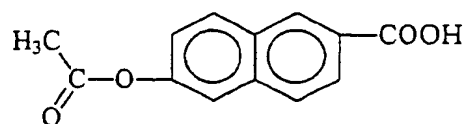
4-Acetoxybenzoesäure – (Endcap 1)



40

6-Acetoxy-2-naphthoesäure – (Endcap 2)

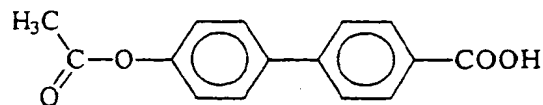
45



50

4'-Acetoxybiphenyl-4-carbonsäure – (Endcap 3)

55



60

Eatons-Reagenz

[0070] Lösung von 7,5 Gew.-% Phosphor-(V)-oxid in Methansulfonsäure

[0071] Alle Polymersynthesen werden unter trockenem Stickstoff als Schutzgas durchgeführt.

65

## Beispiel 1

## Polybenzoxazolcyanurat 1

- 5 **[0072]** 16,94 g (0,03 mol) Bisaminophenol 1 werden in 600 ml Eatons-Reagenz gelöst. Die Apparatur wird mit Argon schutzbegast. Alle nachfolgenden Schritte werden ebenfalls unter Schutzatmosphäre durchgeführt. Zu dieser Lösung werden 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure gelöst in 100 ml Eatons -Reagenz langsam unter Rühren bei Raumtemperatur in die Reaktionslösung eingetropft. Es wird unter Rühren 2 h auf 80°C erwärmt.
- 10 **[0073]** Zu dieser Lösung wird bei Raumtemperatur eine Lösung von 3,87 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 1 in 60 ml Eatons-Reagenz zugetropft. Es wird 5 Stunden unter Rühren auf 80°C erwärmt. Bei 40°C wird zur Reaktionsmischung 2,7 g (0,015 mol) Endcap 1 gelöst in 40 ml Eatons-Reagenz zugetropft. Anschließend wird 6 Stunden unter Rühren auf 100°C erhitzt.
- 15 **[0074]** Zur Isolierung des Polymers wird die Reaktionsmischung über eine Glasfritte filtriert und das Filtrat unter Eiskühlung in ein Gemisch aus 2 l vollentsalztem (VE) Wasser, 2 kg Eis und 250 ml konzentriertem Ammoniak unter Rühren eingetropft, wobei während des Eintropfens noch weiterer konzentrierter Ammoniak zugegeben wird, so dass der pH-Wert nicht unter 8 sinkt. Während des Eintropfens darf die Temperatur nicht über 30°C ansteigen. Das ausgefällte Polymer wird abgesaugt und mit 1 l kaltem VE Wasser gewaschen. Nach dem Absaugen wird das Polymer einmal 1 Stunde bei Raumtemperatur in 2 l einer 3%igen Ammoniaklösung gerührt und anschließend abgesaugt. Das Polymer wird durch mehrmaliges Aufschlemmen in VE Wasser neutral gewaschen, abfiltriert und 72 Stunden bei 50°C/10 mbar
- 20 getrocknet.
- [0075]** Das getrocknete Polymer wird in 300 ml Dimethylformamid und 30 ml konz. Ammoniak unter Rühren 1 h auf 90° erhitzt. Das Polymer wird durch Eintropfen der Reaktionslösung unter Eiskühlung in 2 l 3%iger Ameisensäure ausgefällt, wobei die Temperatur nicht über 30°C ansteigen sollte. Durch weitere Zugabe von Ameisensäure soll der pH-Wert auf 6 eingestellt werden. Das ausgefällte Polymer wird abgesaugt und mit 1 l kaltem VE Wasser gewaschen. Das
- 25 Polymer wird durch mehrmaliges Aufschlemmen in VE Wasser neutral gewaschen, abfiltriert und 72 Stunden bei 50°C/10 mbar getrocknet.
- [0076]** 15 g des getrockneten Polymers werden in 600 ml  $\gamma$ -Butyrolacton gelöst und unter Rühren bei 10°C werden 3,18 g (0,03 mol) Bromcyan zugegeben. Unter Eiskühlung werden bei 0°C bis 5°C unter Rühren 3,04 g (0,03 mol) Triethylamin langsam zugetropft. Es wird 5 h bei 20°C gerührt.
- 30 **[0077]** Zur Isolierung des Polybenzoxazolcyanurates wird die Reaktionsmischung über eine Glasfritte filtriert und das Filtrat unter Eiskühlung in 1 l VE Wasser unter Rühren eingetropft, wobei während des Eintropfens noch weitere 1 l VE Wasser zugegeben werden. Das ausgefällte Polymer wird abgesaugt und mit 2 l kaltem VE Wasser gewaschen. Anschließend wird das Polybenzoxazolcyanurat 96 Stunden bei max. 40°C und 10 mbar getrocknet.
- [0078]** Das auf diese Weise hergestellte Polybenzoxazolcyanurat ist in Lösungsmitteln wie NHP,  $\gamma$ -Butyrolacton,
- 35 Ethyllactat, Diethylenglykolmonomethylether löslich.

## Beispiel 2

## Polybenzoxazolcyanurat 2

- 40 **[0079]** Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 10,99 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2, 3,87 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 1 und 2,7 g (0,015 mol) Endcap 1 verwendet wurde.

## Beispiel 3

## Polybenzoxazolcyanurat 3

- 45 **[0080]** Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 10,99 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2, 4,59 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 2 und 3,45 g (0,015 mol) Endcap 2 verwendet wurde.

## Beispiel 4

## Polybenzoxazolcyanurat 4

- 50 **[0081]** Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 6,49 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2, 2,5 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 3 und 3,84 g (0,015 mol) Endcap 3 verwendet wurde.

## Beispiel 5

## Polybenzoxazolcyanurat 5

- 55 **[0082]** Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 8,4 g (0,03 mol) Bisaminophenol 4, 2,49 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 4 und 2,7 g (0,015 mol) Endcap 1 verwendet wurde.

## Beispiel 6

## Polybenzoxazolcyanurat 6

[0083] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 10,99 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2, 3,63 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 5 und 2,7 g (0,015 mol) Endcap 1 verwendet wurde. 5

## Beispiel 7

## Polybenzoxazolcyanurat 7

[0084] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 16,94 g (0,03 mol) Bisaminophenol 1, 4,59 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 6 und 3,45 g (0,015 mol) Endcap 2 verwendet wurde. 10 15

## Beispiel 8

## Polybenzoxazolcyanurat 8

[0085] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 10,99 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2, 4,59 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 6 und 3,84 g (0,015 mol) Endcap 3 verwendet wurde. 20

## Beispiel 9

## Polybenzoxazolcyanurat 9

[0086] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 2,1 g (0,01 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 10,98 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2 und 6,9 g (0,03 mol) Endcap 2 verwendet wurde. 25 30

## Beispiel 10

## Polybenzoxazolcyanurat 10

[0087] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 33,85 g (0,06 mol) Bisaminophenol 1, 3,87 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 1 mit 4,59 g (0,015 mol) Dicarbonsäure 2 und 2,7 g (0,015 mol) Endcap 1 verwendet wurde. 35

## Beispiel 11

## Polybenzoxazolcyanurat 11

[0088] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 14,64 g (0,04 mol) Bisaminophenol 2 mit 5,6 g (0,02 mol) Bisaminophenol 4, 7,74 g (0,03 mol) Dicarbonsäure 1 und 3,45 g (0,015 mol) Endcap 2 verwendet wurde. 40 45

## Beispiel 12

## Polybenzoxazolcyanurat 12

[0089] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 1,05 g (0,005 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 7,32 g (0,02 mol) Bisaminophenol 2 mit 2,8 g (0,01 mol) Bisaminophenol 4, 3,06 g (0,01 mol) Dicarbonsäure 2 mit 1,53 g (0,005 mol) Dicarbonsäure 6 und 3,84 g (0,015 mol) Endcap 3 verwendet wurde. 50 55

## Beispiel 13

Polybenzoxazol 13 (Beispiel für  $a = 0$  und  $b = 0$ )

[0090] Durchführung analog Beispiel 1 mit dem Unterschied, dass hier 2,1 g (0,01 mol) 1,3,5-Benzoltricarbonsäure, 10,98 g (0,03 mol) Bisaminophenol 2 und 7,68 g (0,03 mol) Endcap 3 verwendet wurde. 60

## Beispiel 14

## Bestimmung der Thermostabilitäten

[0091] Die dargestellten Polybenzoxazolcyanurate zeigen thermische Stabilitäten von  $> 400^\circ\text{C}$  nach TGA-Untersuchungen (Gerät: STA 1500 der Firma Rheometric Scientific, Aufheizrate: 5 K/min, Schutzgas: Argon). Der isotherme 65

Masseverlust pro Stunde bei 400°C für 10 Stunden ist < 1.5%.

[0092] Damit erfüllen die dargestellten Polybenzoxazolcyanurate die Anforderungen für die beabsichtigten Applikationen.

### Beispiel 15

#### Herstellung von Polymerlösungen

[0093] 10 g der in den Beispielen 1 bis 13 dargestellten Polybenzoxazolcyanurate werden in 40 g dest. NMP (VLSI-Selectipur®) gelöst. Der Lösevorgang erfolgt zweckmäßig auf einer Rüttelapparatur bei Raumtemperatur. Anschließend wird die Lösung durch einen 0.2 µm Filter in ein gereinigtes, partikelfreies Probenglas druckfiltriert. Die Viskosität der Polymerlösung kann durch Variation der gelösten Masse an Polybenzoxazolcyanurat verändert werden.

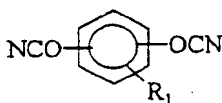
### Beispiel 16

#### Herstellung von Polymerlösungen mit Vernetzerzusatz

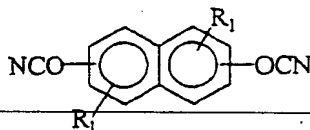
[0094] Durch Verwendung zusätzlicher Vernetzer kann das Aushärteverhalten, das Klebeverhalten die Festigkeit sowie die thermische und chemische Stabilität der Polybenzoxazolcyanurate positiv beeinflusst werden. Als Vernetzer können dabei kurzkettige Verbindungen mit mindestens zwei Cyanuratgruppierungen verwendet werden (siehe Strukturformeln unten). Diese Vernetzer können der Polymerlösung mit 0.1 bis 15 Gew.-% im Bezug auf das Polybenzoxazolcyanurat zugesetzt werden.

#### Bsp. für vernetzende Verbindungen

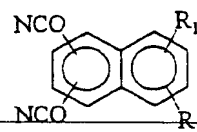
V1



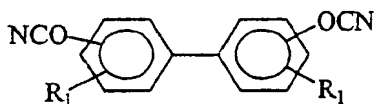
V2



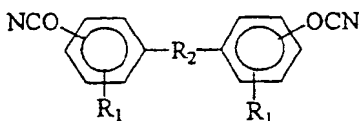
V3



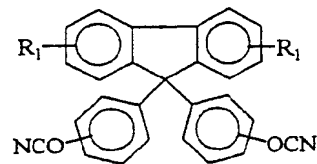
V4



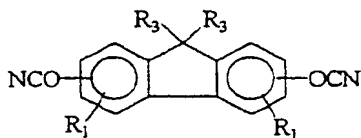
V5



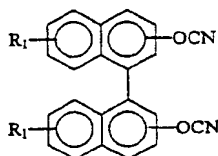
V6



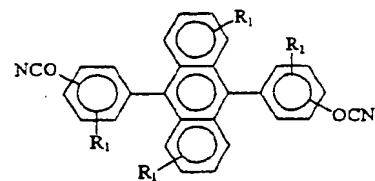
V7



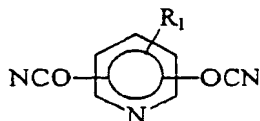
V8



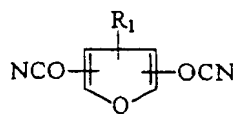
V9



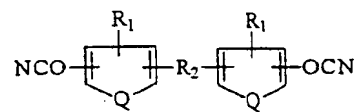
V10



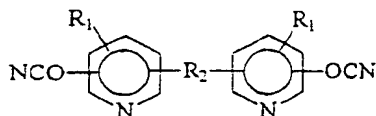
V11



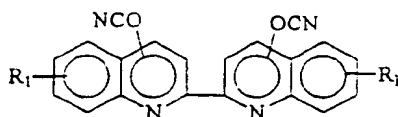
V12



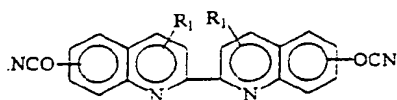
V13



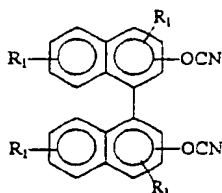
V14



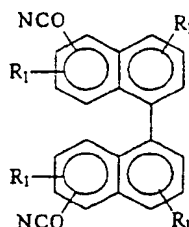
V15



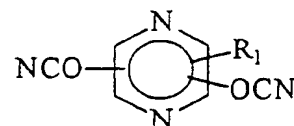
V16



V17



V18



R<sub>1</sub> bis R<sub>3</sub> und Q sind wie oben definiert.

[0095] 10 g der in den Beispielen 1 bis 13 dargestellten Polybenzoxazolcyanurate und 1 g Vernetzer werden in 40 g dest. NMP (VLSI-Selectipur®) gelöst. Der Lösevorgang erfolgt zweckmäßig auf einer Rüttelapparatur bei Raumtemperatur. Anschließend wird die Lösung durch einen 0,2 µm Filter in ein gereinigtes, partikelfreies Probenglas druckfiltriert. Die Viskosität der Polymerlösung kann durch Variation der gelösten Masse an Polybenzoxazolcyanurat verändert werden.

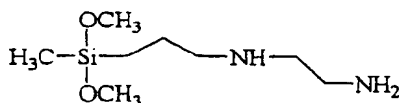
## Beispiel 17

## Herstellung von Haftvermittlerlösungen

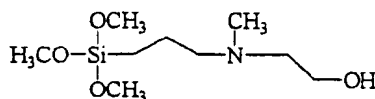
[0096] Durch Verwendung von Haftvermittlern kann die Benetzung der zu klebenden Oberfläche und damit die Haftung der Polybenzoxazolcyanurate auf in der Mikroelektronik relevanten Oberflächen wie z. B. Silizium, Siliziumoxid, Siliziumnitrid, Tantalnitrid, Glas oder Quarz verbessert werden.

[0097] Als Haftvermittler können z. B. folgende Verbindungen verwendet werden:

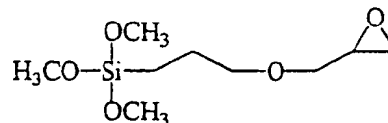
HV1



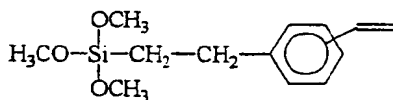
HV2



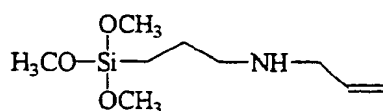
HV3



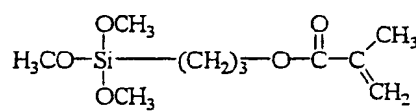
HV4



HV5



HV6



[0098] 0,5 g Haftvermittler (z. B. N-(2-Aminoethyl)-3-aminopropylmethyldimethoxysilan) werden in ein gereinigtes, partikelfreies Probenglas bei Raumtemperatur in 95 g Methanol, Ethanol oder Isopropanol (VLSI-Selectipur®) und 5 g VE Wasser gelöst. Nach 24 h stehen bei Raumtemperatur ist die Haftvermittlerlösung einsatzbereit. Diese Lösung ist maximal 3 Wochen verwendbar.

## Beispiel 18

## Verbesserung der Haftung durch Aufräumen der zu klebenden Oberfläche

[0099] Zur Entfernung von Oxidschichten bei Metallen bzw. zur Aufräumung der Oberfläche ist es vorteilhaft ein mechanisches Schleifverfahren, Bürsten bzw. Sandstrahlen durchzuführen. Die zu klebenden Oberflächen werden deshalb mit einem Schleifmittel behandelt. Die Entfernung von Staubresten kann durch Abblasen mit Druckluft oder waschen in Wasser erfolgen.

## Beispiel 19

## Reinigung der zu klebenden Oberflächen

5 [0100] Zur Entfernung von Öl- und Fettresten oder anderen Verunreinigungen können die zu klebenden Bauteile mit Lösemitteln wie Aceton, Alkoholen, halogenierten Kohlenwasserstoffen oder aromatischen Kohlenwasserstoffen behandelt werden. Das Bauteil kann durch Abreiben mit fusselfreien Materialien, Tauchung in das Lösemittel bei Raumtemperatur oder erhöhter Temperatur bzw. im Ultraschallbad gereinigt werden.

10 [0101] Eine Reinigung kann auch durch Plasma oder Beflammen erfolgen. Dabei wird das zu klebende Bauteil kurzzeitig für ca. 1 min in einen Plasmastrom bzw. in eine Flamme gehalten.

## Beispiel 20

## Auftragen des Haftvermittlers

15 [0102] Der Haftvermittler soll eine monomolekulare Schicht auf der Oberfläche der zu klebenden Teile ergeben. Der Haftvermittler kann zweckmäßigerweise durch Schleudertechnik aufgetragen werden. Dazu wird die Haftvermittlerlösung nach Beispiel 16 über ein 0,2 µm Vorfilter auf die zu klebende Fläche aufgetragen und 30 s bei 5000 u/min geschleudert. Anschließend erfolgt ein Trocknungsschritt 60 s bei 100°C. Eine weitere Möglichkeit des Auftragens des  
20 Haftvermittlers ist die Tauchung der zu klebenden Fläche in die Haftvermittlerlösung und anschließendes Trockenblasen der Fläche. Die so behandelten Flächen sollten innerhalb von 2 h verklebt werden.

## Beispiel 21

## Auftragen des Klebers als Lösung durch Schleudertechnik

25 [0103] Die nach Beispiel 15 oder 16 hergestellte Kleberlösung wird mittels Spritze auf die zu klebende und nach den Beispielen 18 und 19, eventuell auch nach Beispiel 20, vorbehandelte Oberfläche aufgetragen und mit einer Schleuder gleichmäßig verteilt. Die Schleuderumdrehungszahl bestimmt dabei die Schichtdicke des Klebers. Gebräuchliche Bedingungen sind 30 s 1000 u/min bis 3500 u/min. Anschließend erfolgt zur Entfernung des Lösemittels ein Trocknungsschritt  
30 10 min 120°C bei 100 mbar in einem Ofen.

## Beispiel 22

## Auftragen des Klebers als Lösung durch Sprühtechnik

35 [0104] Die nach Beispiel 15 oder 16 hergestellte Kleberlösung wird mittels Sprühvorrückung (z. B. Sprühpistole) auf die zu klebende und nach den Beispielen 18 und 19, eventuell auch nach Beispiel 20, vorbehandelte Oberfläche gleichmäßig aufgetragen. Anschließend erfolgt zur Entfernung des Lösemittels ein Trocknungsschritt 10 min 120°C bei  
40 100 mbar in einem Ofen.

## Beispiel 23

## Auftragen des Klebers als Lösung durch Pinseltechnik

45 [0105] Die nach Beispiel 15 oder 16 hergestellte Kleberlösung wird mittels Pinseltechnik auf die zu klebende Oberfläche gleichmäßig aufgetragen. Der Pinsel sollte aus einem Material sein, das nicht von NMP angegriffen werden kann. Anschließend erfolgt zur Entfernung des Lösemittels ein Trocknungsschritt 10 min 120°C bei 100 mbar in einem Ofen.

## Beispiel 24

## Verklebung

50 [0106] Die nach den Beispielen 21, 22 oder 23 vorbereiteten Bauteile werden auf einer Heizplatte mit 5 N/cm<sup>2</sup> angespresst und auf eine Temperatur von 300°C erwärmt und 20 min bei dieser Temperatur gehalten.  
55 Temperaturbereich allgemein: 250°C bis 350°C

Bereich für Klebezeit: 0,5 min bis 20 min

Bereich für Anpresskraft: 0,5 bis 20 N/cm<sup>2</sup>

60 [0107] Anschließend kann wahlweise ein Ausheizschritt 1 h bei 300°C bis 420°C in einem Ofen erfolgen.

## Beispiel 25

## Verklebung von Titanitrid und Bestimmung der Haftung

65 [0108] Ein nach Beispiel 19 gereinigter 4" (10,25 cm Durchmesser) Siliziumwafer wird mit einer 50 nm dicken Titanitridschicht besputtert. Auf diesen Wafer wird die nach Beispiel 15 hergestellte Kleberlösung eines Polybenzoxazolcyanurats aufgeschleudert, 5 s bei 500 rpm und 25 s bei 3500 rpm. Nach einem kurzen Softbake von 1 min bei 80°C und 10 min trocknen bei 120°C und 100 mbar in einem Ofen werden 10 Siliziumchips der Größe 4 × 4 mm<sup>2</sup>, die ebenfalls

vorher nach Beispiel 18 gereinigt und auf der Oberfläche mit 50 nm Titannitrid besputtert wurden, auf den Polybenzoxazocyanurat-Filmi bei Raumtemperatur mit einer Kraft von 5 N/cm<sup>2</sup> angedrückt. Anschließend werden die geklebten Teile mit einem Anpressdruck von 5 N/cm<sup>2</sup> in einem Ofen mit 3 K/min auf 300°C erwärmt, wobei die Temperatur von 300°C 20 min gehalten wird. Anschließend erfolgt Abkühlung auf Raumtemperatur mit 5 K/min. Nach Abkühlung auf Raumtemperatur wird ein Haftungstest mittels eines Scherestests, Dage Serie 400, durchgeführt.

[0109] Die folgende Auflistung zeigt in der ersten Spalte das verwendete Polymer.

Spalte 2 zeigt die ermittelte Scherkraft.

Spalte 3 zeigt Oberflächenbehandlung der zu klebenden Bauteile (L = Lösungsmittel; M = mech. Schleifen; B = Beflammen; PL = Plasma)

Spalte 4 zeigt, ob und welcher Haftvermittler verwendet wurde.

Spalte 5 zeigt die Art der Verklebung (S = Schleudern; T = Tauchen; P = Pinseln; SP = Sprühen)

Spalte 6 zeigt, ob und welcher Vernetzer zugesetzt wurde.

#### Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	18,13 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 2	20,35 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	SP	--
Polybenzoxazolcyanurat 3	23,51 N/mm <sup>2</sup>	PL	HV2	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 4	20,06 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V2

#### Beispiel 26

#### Verklebung von Tantalnitrid und Bestimmung der Haftung

[0110] Versuch genauso durchgeführt wie mit Titannitrid (Beispiel 25), mit dem Unterschied, dass hier die Oberfläche des Wafers und der Chips nicht aus Titannitrid sondern aus Tantalnitrid bestand.

#### Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	17,99 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	--
Polybenzoxazolcyanurat 6	20,52 N/mm <sup>2</sup>	L	HV2	P	V3
Polybenzoxazolcyanurat 7	20,71 N/mm <sup>2</sup>	PL	HV3	T	V4
Polybenzoxazolcyanurat 8	19,44 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	--

#### Beispiel 27

#### Verklebung von Silizium und Bestimmung der Haftung

[0111] Versuch genauso durchgeführt wie mit Titannitrid (Beispiel 25), mit dem Unterschied, dass hier die Oberfläche des Wafers und der Chips nicht aus Titannitrid sondern aus Silizium bestand.

#### Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 9	20,23 N/mm <sup>2</sup>	L	HV4	S	V3
Polybenzoxazolcyanurat 10	20,12 N/mm <sup>2</sup>	L	HV5	P	V6
Polybenzoxazolcyanurat 11	18,95 N/mm <sup>2</sup>	PL	--	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 12	18,59 N/mm <sup>2</sup>	PL	HV1	SP	--

#### Beispiel 28

#### Verklebung von Glas und Bestimmung der Haftung

[0112] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier ein Glaswafer und 4 x 4 mm Glaschips verwendet wurden.

## DE 101 36 382 A 1

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	18,51 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	T	V1
Polybenzoxazolcyanurat 2	19,55 N/mm <sup>2</sup>	L	HV2	SP	V10
Polybenzoxazolcyanurat 3	18,76 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V3
Polybenzoxazolcyanurat 4	17,83 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	--

10

## Beispiel 29

## Verklebung von Quarzglas und Bestimmung der Haftung

15

[0113] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier ein Quarzwafer und 4 × 4 mm Quarzchips verwendet wurden.

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	16,94 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	S	--
Polybenzoxazolcyanurat 6	17,52 N/mm <sup>2</sup>	PL	--	S	V4
Polybenzoxazolcyanurat 7	17,79 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V2
Polybenzoxazolcyanurat 8	18,67 N/mm <sup>2</sup>	L	HV2	S	V5

30

## Beispiel 30

## Verklebung von Kupfer und Bestimmung der Haftung

[0114] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Kupferplatten und 4 × 4 mm Kupferchips verwendet wurden.

35

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 9	20,40 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 10	19,43 N/mm <sup>2</sup>	M	HV2	T	--
Polybenzoxazolcyanurat 11	19,85 N/mm <sup>2</sup>	B	--	P	V2
Polybenzoxazolcyanurat 13	20,10 N/mm <sup>2</sup>	M	HV3	S	V3

45

## Beispiel 31

## Verklebung von Messing und Bestimmung der Haftung

50

[0115] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Messingplatten und 4 × 4 mm Messingchips verwendet wurden.

55

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	21,06 N/mm <sup>2</sup>	M	HV1	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 2	20,31 N/mm <sup>2</sup>	M	--	Sp	V4
Polybenzoxazolcyanurat 3	19,44 N/mm <sup>2</sup>	B	HV2	T	V10
Polybenzoxazolcyanurat 4	20,29 N/mm <sup>2</sup>	L	HV4	P	--

60

65



## Beispiel 32

## Verklebung von Stahl und Bestimmung der Haftung

[0116] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Stahlplatten und 4 x 4 mm Stahlchips verwendet wurden. 5

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	19,16 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	--	10
Polybenzoxazolcyanurat 6	18,89 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	V3	
Polybenzoxazolcyanurat 7	19,70 N/mm <sup>2</sup>	M	HV3	P	--	
Polybenzoxazolcyanurat 8	19,41 N/mm <sup>2</sup>	M	HV4	P	V2	15

## Beispiel 33

## Verklebung von Aluminium und Bestimmung der Haftung

[0117] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Aluminiumplatten und 4 x 4 mm Aluminiumchips verwendet wurden. 20

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 9	19,42 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	V1	
Polybenzoxazolcyanurat 10	18,06 N/mm <sup>2</sup>	M	HV1	S	V2	30
Polybenzoxazolcyanurat 11	19,22 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	P	--	
Polybenzoxazolcyanurat 12	20,69 N/mm <sup>2</sup>	M	HV6	P	V6	35

## Beispiel 34

## Verklebung von Keramik und Bestimmung der Haftung

[0118] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Keramikplatten und 4 x 4 mm Keramikchips verwendet wurden. 40

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	19,54 N/mm <sup>2</sup>	B	HV2	T	V3	45
Polybenzoxazolcyanurat 2	20,64 N/mm <sup>2</sup>	L	HV4	SP	V1	
Polybenzoxazolcyanurat 3	18,88 N/mm <sup>2</sup>	L	HV5	S	--	50
Polybenzoxazolcyanurat 4	19,60 N/mm <sup>2</sup>	B	--	T	--	

## Beispiel 35

## Verklebung von Marmor und Bestimmung der Haftung

[0119] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Marmorplatten und 4 x 4 mm Marmorstücke verwendet wurden. 60

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	20,36 N/mm <sup>2</sup>	M	HV2	P	V1
Polybenzoxazolcyanurat 6	21,21 N/mm <sup>2</sup>	B	--	P	--
Polybenzoxazolcyanurat 7	20,82 N/mm <sup>2</sup>	M	HV3	Sp	--
Polybenzoxazolcyanurat 8	20,35 N/mm <sup>2</sup>	M	--	Sp	V3

## Beispiel 36

## Verklebung von Granit und Bestimmung der Haftung

[0120] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Granit und 4 x 4 mm Granitstücke verwendet wurden.

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 9	20,21 N/mm <sup>2</sup>	B	HV1	T	V3
Polybenzoxazolcyanurat 10	19,74 N/mm <sup>2</sup>	B	HV4	T	V1
Polybenzoxazolcyanurat 12	19,29 N/mm <sup>2</sup>	M	--	P	V2
Polybenzoxazolcyanurat 13	18,21 N/mm <sup>2</sup>	L	HV2	Sp	--

## Beispiel 37

## Verklebung von Siliziumcarbid und Bestimmung der Haftung

[0121] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Siliziumcarbidwafer und 4 x 4 mm Siliziumcarbidchips verwendet wurden.

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	17,95 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 2	18,38 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	S	--
Polybenzoxazolcyanurat 3	17,26 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	V6
Polybenzoxazolcyanurat 4	19,15 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	V3

## Beispiel 38

## Verklebung von Silizium mit Kupfer und Bestimmung der Haftung

[0122] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Siliziumwafer und 4 x 4 mm Kupferstücke verwendet wurden.

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	18,73 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V3
Polybenzoxazolcyanurat 6	19,40 N/mm <sup>2</sup>	B	HV1	S	--
Polybenzoxazolcyanurat 7	17,07 N/mm <sup>2</sup>	B	HV2	P	V2
Polybenzoxazolcyanurat 8	17,55 N/mm <sup>2</sup>	L	HV2	S	--

## Beispiel 39

## Verklebung von Silizium mit Keramik und Bestimmung der Haftung

[0123] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Siliziumwafer und 4 x 4 mm Keramikchips verwendet wurden. 5

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 9	18,11 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	--	10
Polybenzoxazolcyanurat 10	18,48 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	V4	
Polybenzoxazolcyanurat 11	18,35 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	S	--	
Polybenzoxazolcyanurat 12	17,91 N/mm <sup>2</sup>	L	--	T	V4	15

## Beispiel 40

## Verklebung von Silizium mit Glas und Bestimmung der Haftung

[0124] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Siliziumwafer und 4 x 4 mm Glaschips verwendet wurden. 20

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	19,02 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	S	V5	
Polybenzoxazolcyanurat 2	19,85 N/mm <sup>2</sup>	L	HV6	S	--	30
<del>Polybenzoxazolcyanurat 3</del>	<del>18,30 N/mm<sup>2</sup></del>	<del>L</del>	<del>HV4</del>	<del>S</del>	<del>V2</del>	
Polybenzoxazolcyanurat 4	17,23 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	V1	35

## Beispiel 41

## Verklebung von Aluminium mit Glas und Bestimmung der Haftung

[0125] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Aluminiumwafer und 4 x 4 mm Glaschips verwendet wurden. 40

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	16,96 N/mm <sup>2</sup>	L	--	S	--	45
Polybenzoxazolcyanurat 6	17,52 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	P	V4	
Polybenzoxazolcyanurat 7	16,72 N/mm <sup>2</sup>	L	--	Sp	V10	50
Polybenzoxazolcyanurat 8	18,16 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	S	--	

## Beispiel 42

## Verklebung von Stahl und Glas und Bestimmung der Haftung

[0126] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Stahlplatten und 4 x 4 mm Glaschips verwendet wurden. 60

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 9	16,51 N/mm <sup>2</sup>	L	HV2	S	V1
Polybenzoxazolcyanurat 10	16,83 N/mm <sup>2</sup>	L	--	T	V3
Polybenzoxazolcyanurat 11	17,48 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	S	V3
Polybenzoxazolcyanurat 12	17,17 N/mm <sup>2</sup>	L	HV4	S	V6

## Beispiel 43

## Verklebung von Granit mit Glas und Bestimmung der Haftung

[0127] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Granit und 4 × 4 mm Glasp chips verwendet wurden.

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 1	16,72 N/mm <sup>2</sup>	B	--	T	V3
Polybenzoxazolcyanurat 2	17,13 N/mm <sup>2</sup>	L	HV3	P	--
Polybenzoxazolcyanurat 3	16,31 N/mm <sup>2</sup>	L	HV1	P	V2
Polybenzoxazolcyanurat 4	17,83 N/mm <sup>2</sup>	B	HV6	S	V1

## Beispiel 44

## Verklebung von Kupfer mit Aluminium und Bestimmung der Haftung

[0128] Versuch genauso durchgeführt wie im Beispiel 25, mit dem Unterschied, dass hier Kupferplatten und 4 × 4 mm Aluminiumstücke verwendet wurden.

## Ermittelte mittlere Scherkraft

Polybenzoxazolcyanurat 5	18,53 N/mm <sup>2</sup>	M	HV1	P	--
Polybenzoxazolcyanurat 6	19,61 N/mm <sup>2</sup>	M	HV3	Sp	V10
Polybenzoxazolcyanurat 7	20,38 N/mm <sup>2</sup>	M	HV4	T	V3
Polybenzoxazolcyanurat 8	19,19 N/mm <sup>2</sup>	M	--	P	V1

## Beispiel 45

## Vergleichsbeispiel Haftung

[0129] Das Polyimid PIMEL G-7636C der Firma Asahi Kasei wurde analog Beispiel 15 in NMP gelöst sowie nach Beispiel 25 verklebt. Es konnten folgende Mittelwerte der Haftung mittels Schertester der Firma Dage Serie 4000 ermittelt werden:

Oberfläche Titannitrid: 13,26 N/mm<sup>2</sup>  
 Oberfläche Tantalnitrid: 14,61 N/mm<sup>2</sup>  
 Oberfläche Silizium: 14,31 N/mm<sup>2</sup>  
 Oberfläche Glas: 12,18 N/mm<sup>2</sup>  
 Oberfläche Kupfer: 13,52 N/mm<sup>2</sup>  
 Oberfläche Stahl: 10,38 N/mm<sup>2</sup>  
 Oberfläche Keramik: 13,03 N/mm<sup>2</sup>

## Beispiel 46

## Bestimmung der Stabilität gegen organische Lösemittel

[0130] Die nach den Beispielen 25 bis 44 hergestellten Verklebungen wurden 3 h in Aceton bei 40°C, 3 h in Chloroform bei 40°C, 3 h in Toluol bei 60°C und 3 h in NMP auf 80°C erhitzt.

[0131] Anschließend wurde der Wafer mit VE Wasser gewaschen. Der Wafer wurde 60 min bei 200°C im Vakuum getrocknet und die Haftung mittels Schertester der Firma Dage Serie 4000 bestimmt. Die geklebten Beispiele 32 bis 50 ergaben keine Ablösungserscheinungen. Die Klebekraft blieb nach diesem Test unverändert.  
Vergleichsbeispiel 45: 5,78 N/mm<sup>2</sup> (Oberfläche Glas)

## Beispiel 47

## Bestimmung der Stabilität gegen Säuren

[0132] Die nach den Beispielen 25 bis 30, 36, 39, 41, 42 hergestellten Bauteile wurden 5 h in konzentrierte Salzsäure bei Raumtemperatur (25°C) und 5 h in 50%ige Schwefelsäure bei 60°C gelagert. Anschließend wurde die Verklebung mit VE Wasser gewaschen. Die Verklebung wurde 60 min bei 200°C im Vakuum getrocknet und die Haftung mittels Schertester der Firma Dage Serie 4000 bestimmt. Die geklebten Teile zeigten keine Ablösungserscheinungen. Die Klebekraft blieb unverändert.  
Vergleichsbeispiel 45: 7,15 N/mm<sup>2</sup> (Oberfläche Glas)

## Beispiel 48

## Bestimmung der Stabilität gegen Basen

[0133] Die nach den Beispielen 25, 26, 30 bis 32, 34 bis 37 bzw. 45 hergestellten Verklebungen wurden 24 h in konzentrierte Kalilauge bei 40°C und 24 h in konzentrierte Ammoniaklösung bei RT gelagert. Anschließend wurde die Verklebung mit VE Wasser gewaschen. Die Verklebung wurde 60 min bei 200°C im Vakuum getrocknet und die Haftung mittels Schertester der Firma Dage Serie 4000 bestimmt. Die geklebten Bauteile zeigten keine Ablösungserscheinungen. Die Klebekraft blieb unverändert. Ablösungserscheinungen. Die Klebekraft blieb unverändert.  
Vergleichsbeispiel 45: 6,25 N/mm<sup>2</sup> (Oberfläche Glas)

## Beispiel 49

## Bestimmung der Wasseraufnahme

~~[0134] Eine nach den Beispielen 24 bis 43 hergestellte Verklebung mit bekannter Masse an Kleber Polybenzoxazolcyanurat 1 wurde mit einer Analysenwaage AT261 DeltaRange ausgewogen und anschließend 10 h bei 80°C in Wasser gelagert. Nach einem kurzen Trockenschritt von 15 min 50°C im Trockenschrank erfolgte eine weitere Gewichtsbestimmung. Aus der Massendifferenz wurde die prozentuale Wasseraufnahme bezogen auf die Masse an Kleber berechnet.~~  
[0135] Ermittelte Wasseraufnahme:  
Beispiel 25: 0,7%  
Beispiel 29: 1,0%  
Beispiel 34: 0,8%  
Beispiel 34: 0,6%  
Beispiel 38: 0,7%  
Beispiel 41: 0,9%  
Vergleichsbeispiel 45: 4,1%

## Beispiel 50

## Bestimmung der Haftung nach thermischen Belastungstest

[0136] Die nach den Beispielen 25 bis 44 hergestellten Verklebungen wurden in einem Ofen unter Stickstoff 1 h auf 430°C erhitzt. Nach dem Abkühlen wurde jeweils der Schertest durchgeführt. Die Klebekraft blieb unverändert.  
Vergleichsbeispiel 45: 5,94 N/mm<sup>2</sup> (Oberfläche Keramik)

## Beispiel 51

## Bestimmung der Haftung nach Klimatest

[0137] Eine nach den Beispielen 25 bis 44 hergestellten Verklebungen wurden in einem Klimaschrank, Vötsch VT7004, zwischen -50°C und 150°C für 500 Zyklen thermisch belastet. Im Anschluß an diese Behandlung wurde jeweils ein Schertest durchgeführt. Die Klebekraft blieb unverändert.  
Vergleichsbeispiel 45: 8,73 N/mm<sup>2</sup> (Oberfläche Keramik)

## Beispiel 52

## Bestimmung der Haftung bei 250°C

[0138] Die Haftung einer nach den Beispielen 24 bis 43 hergestellte Verklebung mit Polybenzoxazolcyanurat 1 wurde auf einem Schertester der Firma Dage Serie 4000 mit Heiztisch bei 250°C getestet.  
[0139] Mittelwerte der Haftung:

Beispiel 25: 15.90 N/mm<sup>2</sup> Beispiel 27: 16.23 N/mm<sup>2</sup> Beispiel 31: 15.05 N/mm<sup>2</sup> Beispiel 32: 15.62 N/mm<sup>2</sup> Beispiel 40: 16.27 N/mm<sup>2</sup> Beispiel 44: 14.83 N/mm<sup>2</sup> Vergleichsbeispiel 45: 9.72 N/mm<sup>2</sup> (Oberfläche Keramik)

## Beispiel 53

## Füllen von engen Gräben

[0140] Das Polybenzoxazolcyanurat 1 wurde nach Beispiel 15 in NMP gelöst, (20 Gew.%ige Lösung) und die Lösung über eine Membran mit 0,2 µm Poren druckfiltriert. Diese Lösung wurde auf ein Substrat (Silicium) aufgeschleudert, auf dem sich bereits metallische Al-Strukturen befanden. Nach Aufschleudern der Lösung wird die Schicht je 2 min. bei 100°C, 140°C und 200°C auf einer Hotplate getrocknet und anschließend 1 h bei 350°C unter Stickstoff getempert. Die Metallstrukturen, die teilweise ein Aspektverhältnis über 4 haben, wobei der Abstand zwischen den Strukturen teilweise nur 120 nm beträgt, werden bei diesem Prozeß elektrisch von einander isoliert. Das Polybenzoxazolcyanurat 1 füllt die Gräben defektfrei. Dies kann rasterelektronenmikroskopisch gezeigt werden. Fig. 1 zeigt eine typische rasterelektronenmikroskopische (REM)-Aufnahme von mit erfindungsgemäßen PBO gefüllten Al-Strukturen auf einem Substrat. Das Polybenzoxazolcyanurat hat die auf dem Substrat 2 befindlichen, durch die Al-Strukturen gebildeten Gräben ohne Blasenbildung ausgefüllt.

## Beispiel 54

## Füllen von engen Gräben

[0141] Der Versuch wird genauso durchgeführt wie im Beispiel 53, mit dem Unterschied, dass hier das Polybenzoxazolcyanurat 2 verwendet wurde. Das Ergebnis ist gleich, d. h. das Material füllt die Gräben ohne Fehlstellen.

## Beispiel 55

## Füllen von engen Gräben

[0142] Der Versuch wird genauso durchgeführt wie im Beispiel 53, mit dem Unterschied, dass hier das Polybenzoxazolcyanurat 3 verwendet wurde. Das Ergebnis ist gleich, d. h. das Material füllt die Gräben ohne Fehlstellen.

## Beispiel 56

## Füllen von engen Gräben

[0143] Der Versuch wird genauso durchgeführt wie im Beispiel 53, mit dem Unterschied, dass hier das Polybenzoxazolcyanurat 5 verwendet wurde. Das Ergebnis ist gleich, d. h. das Material füllt die Gräben ohne Fehlstellen.

## Beispiel 57

## Füllen von engen Gräben

[0144] Der Versuch wird genauso durchgeführt wie im Beispiel 53, mit dem Unterschied, dass hier das Polybenzoxazolcyanurat 7 verwendet wurde. Das Ergebnis ist gleich, d. h. das Material füllt die Gräben ohne Fehlstellen.

## Beispiel 58

## Füllen von engen Gräben

[0145] Der Versuch wird genauso durchgeführt wie im Beispiel 53, mit dem Unterschied, dass hier das Polybenzoxazolcyanurat 9 verwendet wurde. Das Ergebnis ist gleich, d. h. das Material füllt die Gräben ohne Fehlstellen.

## Beispiel 59

## Füllen von engen Gräben

[0146] Der Versuch wird genauso durchgeführt wie im Beispiel 53, mit dem Unterschied, dass hier das Polybenzoxazolcyanurat 12 verwendet wurde. Das Ergebnis ist gleich, d. h. das Material füllt die Gräben ohne Fehlstellen.

## Beispiel 60

## Bestimmung der Dielektrizitätskonstante

[0147] Das Polybenzoxazolcyanurat 2 wurde nach Beispiel 15 in NMP gelöst (20%ige Lösung) und die Lösung über eine Membran mit 0,2 µm Poren druckfiltriert. Ein schematischer Aufbau zur Messung der Dielektrizitätskonstanten ist in Fig. 2 gezeigt. Diese Lösung wird auf ein Siliciumsubstrat 3, auf der sich bereits eine 600 nm dicke Ti-Schicht 4 befindet, aufgeschleudert. Die Schicht wird bei 100°C und 140°C je 2 min. auf einer Hotplate getrocknet und anschließend

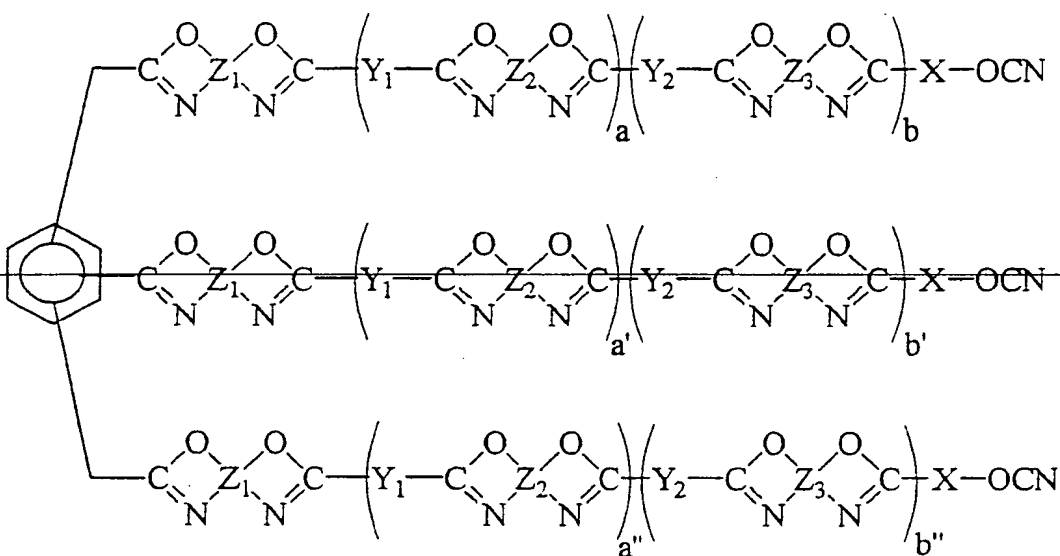
bei 350°C. eine Stunde in einer Stickstoffatmosphäre getempert. Auf diese Schicht 5 mit ca. 1,5 µm Dicke werden anschließend über eine Schattenmaske 6 Ti-Elektroden (Ti-Pads) 7 von 6–12 mm Durchmesser gesputtert. Die Dielektrizitätskonstante, die nach dem Schema in Fig. 2 mit einem Impedanzspektrometer 8 gemessen wurde, beträgt in dem Frequenzbereich von 100 Hz bis 1 MHz 2,9.

## Bezugszeichenliste

- 1 Polybenzoxazole mit endständigen Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanuratgruppen
- 2 Silicium-Substrat
- 3 Silicium-Substrat
- 4 Ti-Schicht
- 5 Schicht aus PBO mit endständigen Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanuratgruppen
- 6 Schattenmaske
- 7 Ti-Elektroden bzw. Ti-Pads
- 8 Impedanzspektrometer

## Patentansprüche

1. Phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen.
2. Polybenzoxazole nach Anspruch 1 mit der nachfolgenden allgemeinen Formel (I):



wobei für a, a', a'', b, b' und b'' unabhängig voneinander gilt:

a, a', a'' = 0–100;

b, b', b'' = 0–100;

X die folgende Bedeutung aufweist: substituiertes oder unsubstituiertes Aryl, eine substituierte oder unsubstituierte mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffverbindung, ein substituiertes oder unsubstituiertes kondensiertes Ringsystem oder ein substituiertes oder unsubstituiertes heterocyclischer Rest;

Y<sub>1</sub> und Y<sub>2</sub> die folgende Bedeutung aufweisen, wobei Y<sub>1</sub> gleich oder ungleich Y<sub>2</sub> sein kann:

substituiertes oder unsubstituiertes Aryl, eine substituierte oder unsubstituierte mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffverbindung, ein substituiertes oder unsubstituiertes kondensiertes Ringsystem, jeweils substituiertes oder unsubstituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Aralkyl, Aralkenyl, Aralkinyl, Heterocyclo oder Cycloalkenyl;

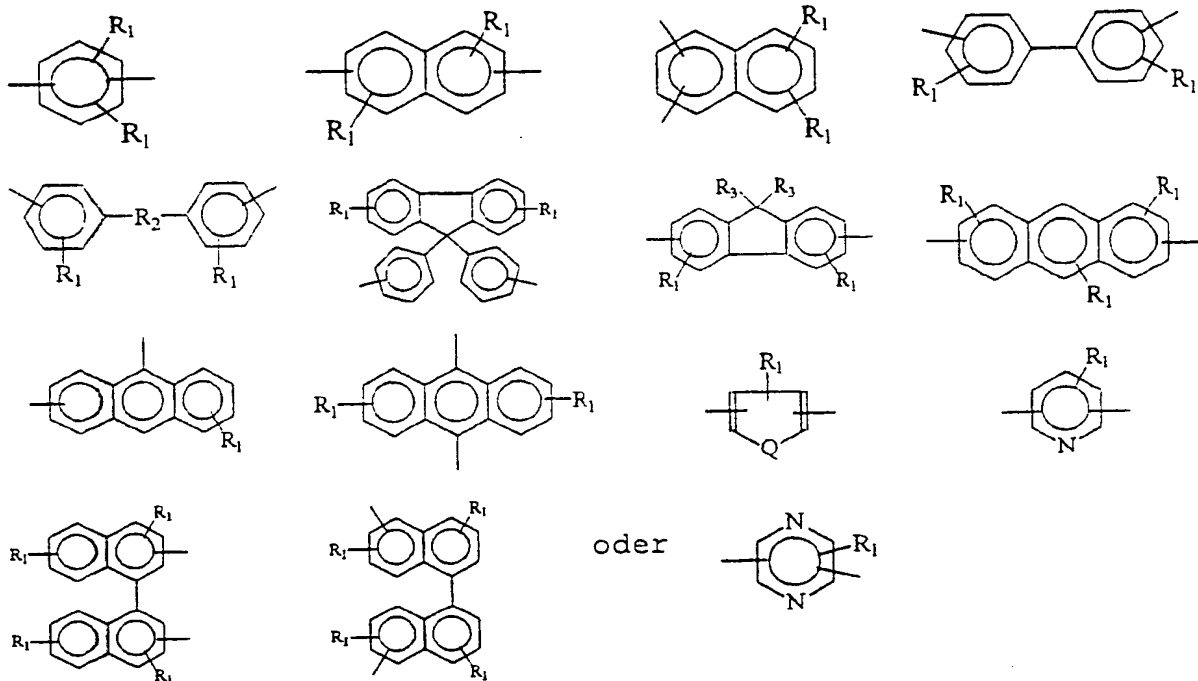
und Z<sub>1</sub> bis Z<sub>3</sub> jeweils unabhängig voneinander die nachfolgende Bedeutung aufweisen:

jeweils substituiertes oder unsubstituiertes Aryl, Aralkyl, Aralkenyl, Aralkinyl, Heteroaryl, eine substituierte oder unsubstituierte mehrkernige aromatische Kohlenwasserstoffverbindung oder ein substituiertes oder unsubstituiertes kondensiertes Ringsystem.

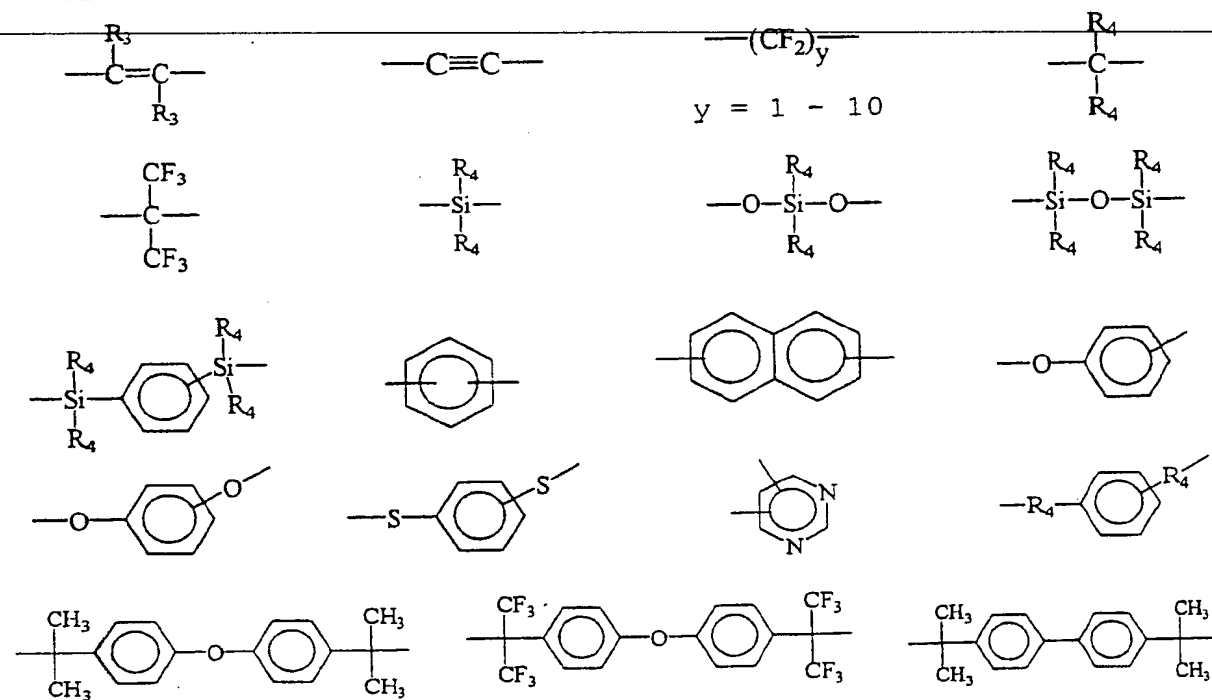
3. Polybenzoxazole nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass a, a' und/oder a'' unabhängig voneinander 0–20, bevorzugt 1–20, sind.

4. Polybenzoxazole nach einem oder mehreren der Ansprüche 1–3, dadurch gekennzeichnet, dass b, b' und/oder b'' unabhängig voneinander 0–20, bevorzugt 1–20, sind.

5. Polybenzoxazole nach einem oder mehreren der Ansprüche 1–4, dadurch gekennzeichnet, dass X die folgende Bedeutung aufweist:

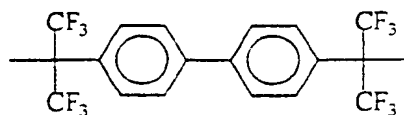
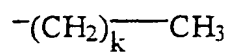


wobei für Q gilt: -O-, -S- oder -NH-;  
 für R<sub>1</sub> gilt: -H, -CF<sub>3</sub>, -OCN, Alkyl oder Aryl;  
 für R<sub>2</sub> gilt: -O-, -CO-, NR<sub>3</sub>-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, -S<sub>2</sub>-, -CH<sub>2</sub>-, ausserdem:

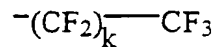




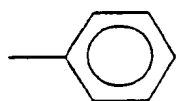
oder

für  $R_3$  gilt:  $-H$ , ausserdem:

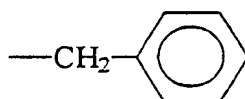
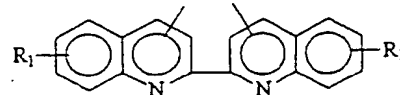
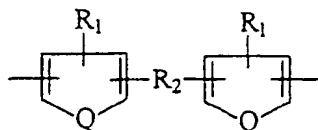
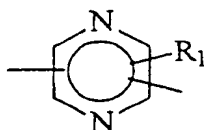
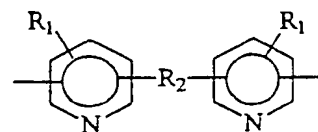
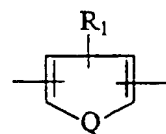
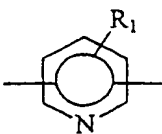
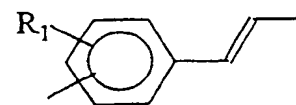
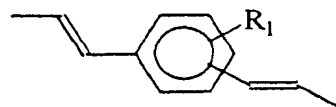
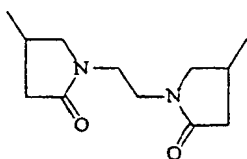
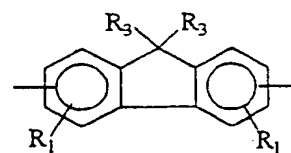
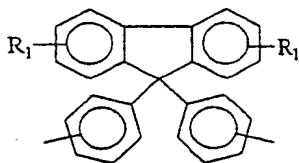
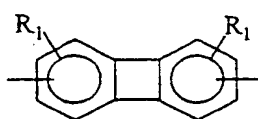
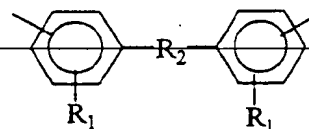
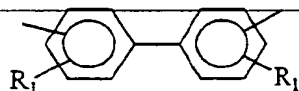
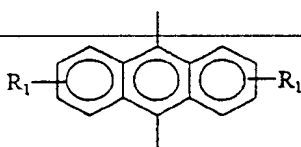
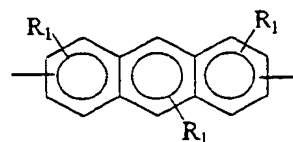
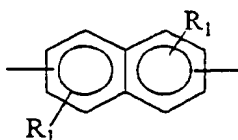
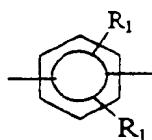
(k = 0 - 10)

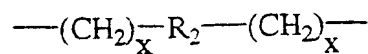
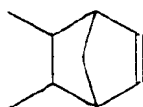
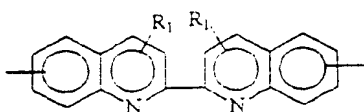


(k = 0 - 10)



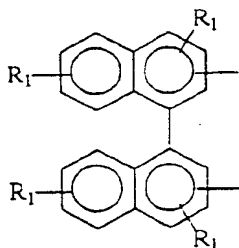
oder

und für  $R_4$  gilt: Alkyl mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Aryl.6. Polybenzoxazole nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass für  $Y_1$  und  $Y_2$  gilt, wobei  $Y_1$  gleich oder ungleich  $Y_2$  sein kann:

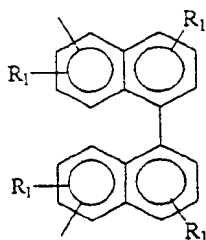


(x = 1 - 10); wenn

R<sub>2</sub> = -CH<sub>2</sub>-, dann x = 0 - 10

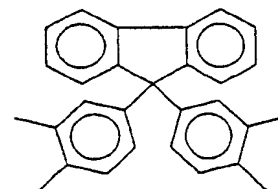
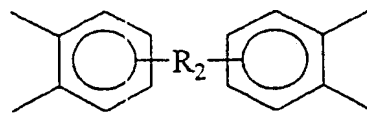
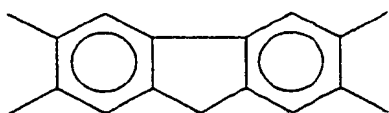
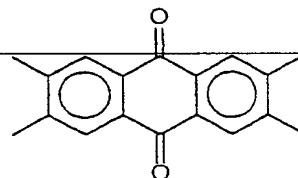
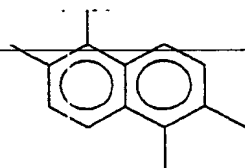
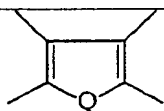
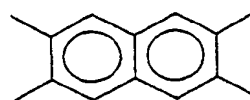
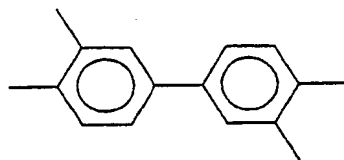
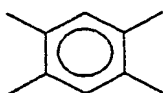


oder

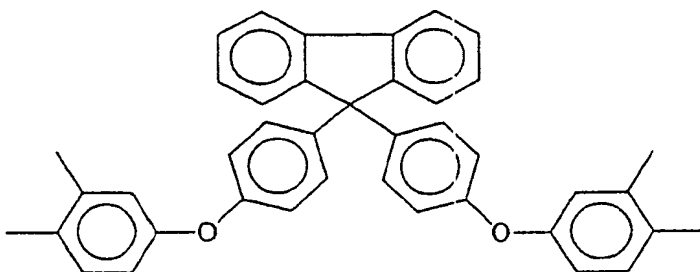


wobei R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub> und Q wie in Anspruch 5 definiert sind.

7. Polybenzoxazole nach einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass für Z<sub>1</sub> bis Z<sub>3</sub> gilt, wobei Z<sub>1</sub> bis Z<sub>3</sub> gleich oder ungleich voneinander sein können:



oder



wobei Q und R<sub>2</sub> wie in Anspruch 5 definiert sind.

6. Verfahren zur Herstellung von Polybenzoxazolcyanuraten der allgemeinen Formel (I), wie in Anspruch 2 definiert, mit den Schritten:

a. Umsetzen eines Bisaminophenols der Formel

H<sub>2</sub>N-(HO)Z<sub>1</sub>(OH)-NH<sub>2</sub> und/oder H<sub>2</sub>N-(HO)Z<sub>2</sub>(OH)-NH<sub>2</sub> und/oder

H<sub>2</sub>N-(HO)Z<sub>3</sub>(OH)-NH<sub>2</sub> mit Benzol-1,3,5-tricarbonsäure, anschließend wahlweise mit einer Verbindung zur Einführung der Gruppe Y<sub>1</sub> und/oder Y<sub>2</sub>, und anschließend mit einer Verbindung zur Einführung der Gruppe X-OH, um ein phenylverknüpftes Polybenzoxazol mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Hydroxygruppen zu erhalten:

- b. Umsetzen der unter Schritt a. erhaltenen phenylverknüpften Polybenzoxazole, die endständige, Aryl- oder Heteroaryl-gebundene Hydroxygruppen aufweisen, mit Bromcyan, um phenylverknüpfte Polybenzoxazole mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Cyanurat-Gruppen zu erhalten:
- wobei  $Z_1, Z_2, Z_3, X, Y_1$  und  $Y_2$  wie in Anspruch 2 definiert sind.
9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung gemäß Schritt a. in einem Lösungsmittel durchgeführt wird, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: Methansulfonsäure, N-Methylpyrrolidon, Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid,  $\gamma$ -Butyrolacton, Polyphosphorsäure, einer Mischung aus Schwefelsäure und Phosphorsäure sowie Mischungen hiervon. 5
  10. Verfahren nach Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass in Schritt a. die Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  eine Dicarbonsäure der Formel  $\text{HOOC}-Y_1-\text{COOH}$  und/oder  $\text{HOOC}-Y_2-\text{COOH}$  ist, die Verbindung zur Einführung der Gruppe X eine Hydroxycarbonsäure der Formel  $\text{HO}-X-\text{COOH}$  ist, und die Umsetzung gemäß Schritt a. in Gegenwart von Phosphorpentoxid erfolgt. 10
  11. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung gemäß Schritt a. in Gegenwart von 5–10 Gew.-% Phosphorpentoxid, bezogen auf die Zusammensetzung aus Lösungsmittel und Phosphorpentoxid, durchgeführt wird. 15
  12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Umsetzung gemäß Schritt a. in Methansulfonsäure durchgeführt wird.
  13. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass in Schritt a. die Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  eine Dicarbonsäure der Formel  $\text{HOOC}-Y_1-\text{COOH}$  und/oder  $\text{HOOC}-Y_2-\text{COOH}$  ist, die Verbindung zur Einführung der Gruppe X eine Hydroxycarbonsäure der Formel  $\text{HO}-X-\text{COOH}$  ist, und die Umsetzung gemäß Schritt a. in Gegenwart einer carbonsäureaktivierenden Gruppe durchgeführt wird, 20  
und anschließend das Produkt in Lösung durch Temperaturbehandlung zu Polybenzoxazolen mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Hydroxygruppen cyclisiert wird.
  14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass die carbonsäureaktivierende Gruppe Carbonyldiimidazol, Dicyclohexylcarbodiimid, Hydroxysuccinimid oder Hydroxybenzotriazol ist. 25
  15. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass in Schritt a. die Verbindung zur Einführung der Gruppe  $Y_1$  und/oder  $Y_2$  ein Dicarbonsäurechlorid der Formel  $\text{ClOC}-Y_1-\text{COCl}$  und/oder  $\text{ClOC}-Y_2-\text{COCl}$  ist oder ein anderes reaktives Dicarbonsäurederivat, die Verbindung zur Einführung der Gruppe X ein Hydroxycarbonsäurechlorid der Formel  $\text{HO}-X-\text{COCl}$  ist oder ein anderes reaktives Hydroxycarbonsäurederivat, wobei Schritt a. in Gegenwart einer N-haltigen organischen Base durchgeführt wird, 30  
und das in Schritt a. zunächst erhaltene Produkt in Lösung durch Temperaturbehandlung zu Polybenzoxazolen mit endständigen, Aryl- oder Heteroaryl-gebundenen Hydroxygruppen cyclisiert wird.
  16. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 8 bis 15, dadurch gekennzeichnet, dass in der Verbindung zur Einführung der Gruppe  $X-\text{OH}$ , die Hydroxygruppe durch eine Schutzgruppe geschützt ist, und die Schutzgruppe vor der Umsetzung gemäß Schritt b. wieder abgespalten wird. 35
  17. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 8 bis 16, dadurch gekennzeichnet, dass die Schutzgruppe eine Alkyl-, Alkylcarbonyl-, Benzoyl- oder Alkylbenzoylgruppe ist.
  18. Verfahren nach Anspruch einem oder mehreren der Ansprüche 8–17, dadurch gekennzeichnet, dass Schritt b. in Gegenwart einer Base, die eine Substanz mit einem tertiären Stickstoffatom ist, wie Trialkylamin, Dialkylbenzylamin oder Pyridin, durchgeführt wird. 40
  19. Verfahren nach Anspruch einem oder mehreren der Ansprüche 8–18, dadurch gekennzeichnet, dass als Lösungsmittel für Schritt b. Aceton, N-Methylpyrrolidon, Essigsäureethylester,  $\gamma$ -Butyrolacton, halogenierte Kohlenwasserstoffe, aromatische Kohlenwasserstoffe oder Gemische hiervon eingesetzt werden.
  20. Verwendung von Polybenzoxazolen nach einem der Ansprüche 1–7 als Dielektrika in elektronischen Bauteilen. 45
  21. Verwendung nach Anspruch 20 als Dielektrikum zum Füllen enger Spalten aufweisender Strukturen bzw. Gräben, insbesondere zum Füllen von Gräben zwischen metallischen Leiterbahnen, wobei die Gräben eine Spaltbreite von 100 nm und geringer und ein Aspektverhältnis größer 4 aufweisen können.
  22. Verwendung von Polybenzoxazolen nach einem der Ansprüche 1–7 zum Kleben. 50
  23. Verwendung nach Anspruch 22 zum Verkleben der nachfolgenden Materialien bzw. von Bauteilen aus den Materialien: Aluminium, Titan, Vanadium, Chrom, Mangan, Eisen, Kobalt, Nickel, Kupfer, Zink, Stahl, Messing, Palladium, Silber, Zinn, Tantal, Wolfram, Platin, Gold, Blei, Kohlenstoff, eingeschlossen mittels Plasma abgeschiedene kohlenstoffhaltige Schichten, Kohlefasern, Silizium oder Germanium und/oder Legierungen oder Verbindungen dieser Materialien wie Siliziumcarbid, Siliziumnitrid, Siliziumoxid, Titanitrid, Tantalnitrid, Siliziumoxynitrid, Wolframnitridd, Galliumarsenid, Galliumnitrid, Gallium-Indium-Phosphid, Indium-Zinn-Oxid und/oder Gläser, Keramiken, Glaskeramiken, Tonwaren, Porzellan, Steingut und/oder Silikate. 55
  24. Verwendung nach Anspruch 22 oder 23 zum Verkleben von in der Mikro- und Optoelektronik verwendeten Materialien oder Bauteilen.
  25. Verwendung nach einem oder mehreren der Ansprüche 22–24, zum Verkleben von Chips und/oder Wafern. 60
  26. Verwendung nach Anspruch 22, zum Verkleben von Keramiken, Glaskeramiken, Gläsern, Tonwaren, Porzellan, Steingut und/oder Silikaten oder Gesteinen, wie Marmor, Basalt, Kalkstein, Granit und/oder Beton.
  27. Verwendung nach einem oder mehreren der Ansprüche 22–26, dadurch gekennzeichnet, dass die Polybenzoxazole mit endständigen Cyanurat-Gruppen auf das zu beschichtende Substrat bzw. auf das oder die zu verklebenden Materialien aufgebracht werden und anschließend, im Fall der Verklebung nach Inkontaktbringen der zu verklebenden Flächen, eine Vernetzung der Polybenzoxazole mit endständigen Cyanurat-Gruppen erfolgt. 65
  28. Verwendung nach einem oder mehreren der Ansprüche 22–27, dadurch gekennzeichnet, dass die Vernetzung

mittels Temperaturbehandlung, Laserbehandlung, Ultraschall- oder Mikrowellenbehandlung durchgeführt wird.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

5

10

15

20

25

30

---

35

40

45

50

55

60

65

Fig. 1

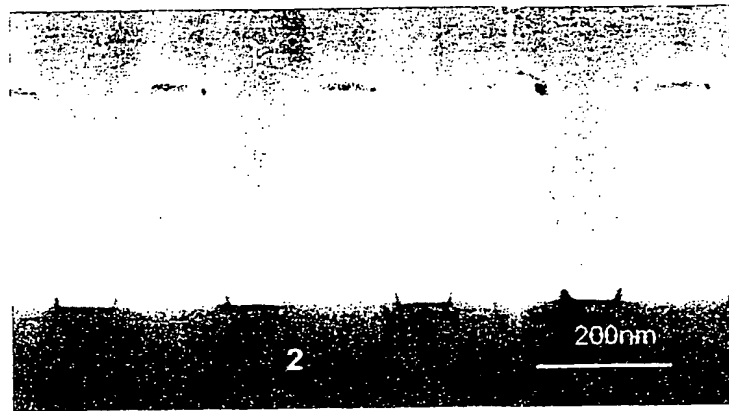


Fig. 2a

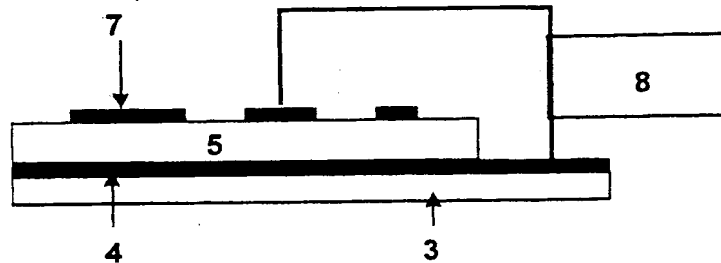
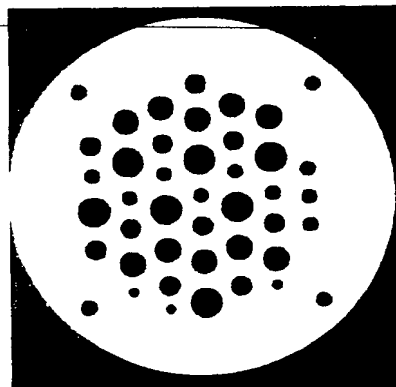


Fig. 2b



DOCKET NO: MUH-12666  
SERIAL NO: 10/609,456  
APPLICANT: Walter et al.  
LERNER AND GREENBERG P.A.  
P.O. BOX 2480  
HOLLYWOOD, FLORIDA 33022  
TEL. (954) 925-1100